

UNIVERSIDADE DE LISBOA
FACULDADE DE CIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA



**ESTUDO DO $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ E DO PERSPEX VERMELHO NA
CARACTERIZAÇÃO DE CAMPOS MISTOS DE RADIAÇÃO DO
REACTOR PORTUGUÊS DE INVESTIGAÇÃO**

Joana Bravo Catela Pinto dos Santos

MESTRADO EM ENGENHARIA FÍSICA

2011

UNIVERSIDADE DE LISBOA
FACULDADE DE CIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA



**ESTUDO DO $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ E DO PERSPEX VERMELHO NA
CARACTERIZAÇÃO DE CAMPOS MISTOS DE RADIAÇÃO DO
REACTOR PORTUGUÊS DE INVESTIGAÇÃO**

Joana Bravo Catela Pinto dos Santos

Dissertação orientada por:
Doutor José Gonçalves Marques

MESTRADO EM ENGENHARIA FÍSICA

2011

AGRADECIMENTOS

Ao Doutor José Marques, orientador desta dissertação, o mais profundo agradecimento pela disponibilidade revelada, pelas críticas e sugestões relevantes feitas durante a orientação e por todo o conhecimento divulgado tornando possível a realização deste trabalho. Dirijo um especial agradecimento à Doutora Ana Fernandes por todo o apoio dispensado, conhecimentos partilhados e pela sua amizade.

À Doutora Rita Wahl e a toda a equipa de operação e exploração do RPI por proporcionarem as irradiações no tubo E4, sistema pneumático, grelha do núcleo e entre placas de combustível, o meu sincero agradecimento. Quero expressar o meu agradecimento ao Doutor Miguel Reis pelas medidas de PIXE, à Dr. Ana Paula Matos e ao grupo de operadores da UTR pelas irradiações e por todo o equipamento dispensado para a leitura dos dosímetros perspex vermelho, e também, ao Dr João Cardoso e ao Luís Santos por todo o apoio técnico prestado nas irradiações no LMRIR.

Cabe ainda agradecer à Doutora Margit Osvay pela disponibilização dos dosímetros de óxido de alumínio e mais uma vez à Doutora Ana Fernandes que os passou para a minha mão com a sugestão de estudá-los na detecção de neutrões. Agradeço à Harwell Dosimeters (UK) por fornecer os dosímetros de Red 4034 e Amber perspex, necessários para realizar os testes no RPI.

O meu obrigada a toda a equipa que participou na instalação do sistema de registo contínuo do sinal proveniente do canal ^{16}N , em especial ao Dr Carlos Canto e Castro por todas as ideias sugeridas, conhecimentos transmitidos, apoio e amizade.

Ao Instituto Tecnológico e Nuclear na pessoa dos seus representantes e colaboradores, o obrigada pelo acolhimento e por proporcionarem a minha participação nos eventos realizados no âmbito desta tese. Aproveito para agradecer também a contribuição de todos os co-autores das publicações e comunicações conjuntas.

Desejo também agradecer ao Engenheiro Carlos Cruz pelo apoio na resolução de diversos problemas, pelos seus preciosos conselhos, experiência partilhada, e, em especial pela sua

amizade. A todos os meus colegas e amigos um agradecimento muito especial pela compreensão, incentivo e amizade manifestados que em muito contribuíram para a execução desta dissertação.

Por fim agradeço a todas as pessoas que de alguma maneira contribuíram para que este trabalho fosse realizado. Obrigada a todos os que forneceram fotos, esquemas, todo o tipo de imagens para compor este trabalho.

RESUMO

Neste trabalho é desenvolvida uma metodologia inovadora, que possibilita a aplicação de um material termoluminescente não comercial, o óxido de alumínio dopado com Mg e Y, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, na medição de doses de neutrões rápidos e fótons num reactor nuclear. Esta metodologia é testada junto ao núcleo e num feixe de neutrões rápidos instalado no tubo E4 do Reactor Português de Investigação do Instituto Tecnológico e Nuclear em Sacavém.

A dose de fótons é determinada pela primeira leitura de termoluminescência após a irradiação, enquanto a componente de neutrões rápidos é caracterizada através da medida da actividade do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, induzida pelos neutrões com energias acima dos 7 MeV. O decaimento dos produtos de reacção origina um sinal termoluminescente auto-induzido, cuja leitura constitui um método alternativo de caracterização do campo de neutrões.

Os resultados obtidos com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ têm revelado uma resposta linear a fótons entre 1 mGy e 10 kGy. Para estender esta gama de detecção é investigada outra técnica na determinação de doses de fótons entre os 5 e os 50 kGy. Usam-se como detectores pequenas placas de polimetilmetacrilato, e, neste caso específico o perspex vermelho. É um método relativo que se baseia nas alterações do espectro de absorção óptica do perspex vermelho quando sujeito à acção dos fótons. As medições de densidade óptica são feitas por espectrofotometria.

A validade destas técnicas é comprovada caracterizando o campo de fótons e de neutrões pelos métodos convencionais: recorrendo a uma câmara de ionização e a detectores de activação com neutrões, respectivamente. Os resultados da investigação provaram que o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ e o perspex vermelho são adequados na dosimetria de fótons em campos-mistos desde que os sistemas dosimétricos estejam devidamente calibrados. Obteve-se um acordo de 90% comparando as doses de fótons obtidas pelos três métodos. O $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ revelou uma precisão da ordem dos 5% na determinação de fluxos de neutrões rápidos ($> 7\text{MeV}$).

Palavras-chave: reactores de investigação; dosimetria de campos mistos; termoluminescência; espectrofotometria; óxido de alumínio; perspex vermelho

ABSTRACT

An innovative methodology is developed in this work, making possible the application of a non-commercial thermoluminescence material, the doped aluminium oxide $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, in the measurement of photon and fast neutron doses at a nuclear reactor. This methodology is tested in core grid positions and in a fast neutron beam implemented at the Portuguese Research Reactor of the Nuclear and Technological Institute in Sacavém.

The photon dose is determined by the first thermoluminescence reading after the irradiation, whereas the fast neutron component is achieved by measuring the activity of the $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, induced for neutrons with energies above 7 MeV. The activity decline of the reaction products auto-induce a thermoluminescence signal, whose reading constitutes an alternative method for the characterization of the neutron field.

Results obtained with $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ have shown a linear response to photons from 1 mGy to 10 kGy. Another technique is here proposed to measure photon doses between 5 and 50 kGy, using as detectors small plates of polymethylmethacrylate and, in this specific case, red perspex. This is a relative method based on the photon induced changes in the optical absorption spectra of perspex. The optical density measurements are made by spectrophotometry.

In order to evaluate the ability of this dosimeters for mixed field dosimetry, the measurements were compared with results obtained via conventional methods: using an ionization chamber; and, characterizing the neutron field using the neutron activation method. Results from this investigation proved that $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ and Red perspex are suitable materials for photon doses measurements if careful calibrations procedures are followed. A comparison of the three methods applied to determine the photon dose shows an agreement within 90%. Results show a precision better than 5% for the determination of fast neutron with $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ ($> 7\text{MeV}$).

Keywords: research reactors; mixed-field dosimetry; thermoluminescence; spectrophotometry; aluminium oxide; red perspex.

ÍNDICE DE MATÉRIAS

0 - INTRODUÇÃO	12
0.1 - Motivação e objectivos	12
0.2 - Aplicações no RPI	15
0.3 - Memória da tese	16
1 – CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS	18
1.1 – Campo de radiação num reactor nuclear	18
1.2 – Dosimetria num reactor nuclear de investigação	20
1.3 – Noções gerais sobre a activação com neutrões	24
1.4 – Dosimetria por termoluminescência	27
1.5 – Dosimetria por espectrofotometria óptica	30
2 – MATERIAIS E MÉTODOS	32
2.1 – Fontes de radiação	32
2.1.1 – O Reactor Português de Investigação	32
2.1.2 – O Laboratório de Metrologia de Radiações Ionizantes e Radioactividade	35
2.1.3 – A Unidade Tecnológica de Radioesterilização	36
2.2 – Detectores de radiação	37
2.2.1 – Detectores de activação com neutrões	37
2.2.2 – Câmaras de ionização	40
2.2.3 – Dosímetros termoluminescentes de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$	42
2.2.4 – Detectores de perspex vermelho	47
2.3 – Medição da potência no RPI	51
2.3.1 – Canais neutrónicos	52
2.3.2 – Canal térmico	53
2.3.3 – Canal ^{16}N	54
2.3.4 – Instalação do sistema de registo contínuo do sinal do canal ^{16}N	55
3 – DOSIMETRIA DO FEIXE NEUTRÕES RÁPIDOS	56
3.1 – Dosimetria de neutrões com detectores de activação	56
3.2 – Dosimetria de fótons com câmaras de ionização	60
3.3 – Dosimetria de neutrões rápidos e de fótons com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$	60
4 – DOSIMETRIA NA GRELHA DO NÚCLEO	64
4.1 – Dosimetria de neutrões com detectores de activação	65
4.2 – Dosimetria de fótons com câmaras de ionização	66
4.3 – Dosimetria de neutrões rápidos e de fótons com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$	68
4.4 – Dosimetria de fótons com dosímetros de perspex vermelho da Harwell	71
5 – DOSIMETRIA NO NÚCLEO N3-P1/1	75
5.1 – Fluxo de neutrões entre placas de combustível	77

6 – CONCLUSÕES	80
SIMBOLOGIA E NOTAÇÕES	83
PUBLICAÇÕES E COMUNICAÇÕES NO ÂMBITO DA TESE	84
BIBLIOGRAFIA	85

ÍNDICE DE FIGURAS

Capítulo 1

- Figura 1.1.** Espectro neutrónico de um reactor a neutrões térmicos. 20
- Figura 1.2.** Processo da termoluminescência. V - banda de valência, C - banda de condução e H - armadilha. (a) Excitação do material por radiação (b) excitação térmica. 28

Capítulo 2

- Figura 2.1.** Configurações do núcleo do RPI (a) N2-P1/8, (b) N2-P1/8a, (c) N2-P1/9 e (d) N3-P1/1. N: elemento de combustível normalizado; C- elemento de combustível de controlo; Be - reflector de berílio; Al - bloco de alumínio; NS - fonte de neutrões de Sb-Be; FC - câmara de cisão; DA - elemento de combustível fictício. 33
- Figura 2.2.** Planta da piscina e grelha do núcleo do RPI. 34
- Figura 2.3.** Tubo E4, feixe de neutrões rápidos do RPI. Filter: 0,7 cm de Boral (Al-B4C) e 4,0 cm de Pb; Collimator: 27 cm de Pb para protecção biológica; Irradiation chamber (60x60x100) cm 35
- Figura 2.4.** Suporte em perspex opaco para irradiação de TLD na fonte de ^{60}Co do LMRIR. 36
- Figura 2.5.** Esquema da câmara de irradiação e labirinto da UTR. (a) Estrutura em madeira usada na calibração dos dosímetros perspex vermelho. 37
- Figura 2.6.** Secção eficaz de reacções de activação utilizadas na detecção de neutrões térmicos (Mn, Au), epitérmicos (Mn, Au) e rápidos (In, Al). 38
- Figura 2.7.** Sistemas de espectrometria gama. (a) Detector de cintilação: A. Tubo fotomultiplicador com cristal NaI(Tl) – Harshaw integral line type 12S12/3E; PreAmp + Filter: LFEN; HV: Fonte de alimentação de alta tensão (+840 V) – LFEN; Amplifier: Ortec Mod. 575a; MCA: Analisador multicanal ORTEC TRUMP-2K-32. (b) Detector Hiperpuro de Germânio: A e PreAmp + Filter: ORTEC GEM-25/85; HV. Fonte de alta tensão (3kV); Amplifier: CANBERRA 2200; MCA: Analisador Multicanal CANBERRA ACCUSPEC 3. 40
- Figura 2.8.** Esquema do núcleo e do dispositivo de posicionamento da câmara de ionização. 41
- Figura 2.9.** Dosímetros TL cerâmicos de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$. 42
- Figura 2.10.** Curva de brilho dos dosímetros TL de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$. a) D-2 (dose de fotões: 70 Gy) e b) D-3 (dose de fotões: 2 Gy). 43
- Figura 2.11.** Leitor Harshaw 3500. 44
- Figura 2.12.** Resposta dos dosímetros TL em função da dose de fotões (pico a $\sim 250^\circ\text{C}$). 44

(a) D-2 e (b) D-3.	46
Figura 2.13. Dosímetros Red 4034 da Harwell (lote JB): dosímetro (direita) e saco de proteção (esquerda).	48
Figura 2.14. (a) Espectrofotômetro Shimadzu UV mini-1240. (b) micrómetro da Mitutoyo (UTR).	50
Figura 2.15. Absorvância específica versus dose de fótons.	50
Figura 2.16. Gama de utilização dos sistemas de controle na medição da potência do RPI.	52
 Capítulo 3	
Figura 3.1. Suporte em Al para irradiações no tubo E4.	56
Figura 3.2. Perfil de nêutrons térmicos e epitérmicos ao longo do feixe rápido do RPI. (d = 0 corresponde ao início do tubo, ou seja, à posição mais próxima do núcleo).	57
Figura 3.3. Perfil de nêutrons rápidos ao longo do feixe de nêutrons rápidos do RPI.	59
Figura 3.4. Distribuição axial do débito de dose de fótons, D'_γ , no tubo E4.	61
Figura 3.5. Fluxo de nêutrons rápidos no feixe de nêutrons rápidos do RPI, obtida com folhas de alumínio e dosímetros de óxido de alumínio: (Δ - Al e O - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$).	62
Figura 3.6. Sinal TL auto-induzido em função da fluência de nêutrons rápidos.	63
 Capítulo 4	
Figura 4.1. Suportes em polietileno para irradiação de detectores nas posições livres da grelha do núcleo. As dimensões estão em mm.	64
Figura 4.2. Taxas de dose de fótons em três configurações do núcleo do RPI.	67
Figura 4.3. Atenuação da taxa de dose gama da posição 44 à 49. (correspondendo a 40.5 - 445.5 mm da face do núcleo).	67
Figura 4.4. Atenuação de nêutrons rápidos e dose de fótons da posição 44 à posição 48 (correspondendo a 40.5 - 364.5 mm da face do núcleo).	70
Figura 4.5. Sinal TL auto-induzido em função da fluência de nêutrons rápidos.	71
Figura 4.6. Dose de fótons em duas posições da grelha do núcleo (PI47 e PI48: posição de irradiação a 283.5 mm e 364.5 mm da face do núcleo respectivamente) para diferentes tempos de irradiação. As barras de erro correspondem a uma incerteza de 10%.	72
Figura 4.7. Atenuação de fótons da posição 47 para a posição 48 da grelha do núcleo.	74
 Capítulo 5	
Figura 5.1. (a) Elemento de combustível standard. (b) Suporte em acrílico para irradiação entre placas de combustível. As dimensões estão em mm.	76

Figura 5.2. Perfil vertical do fluxo de neutrões entre placas de combustível. (a) neutrões térmicos (b) neutrões epitérmicos. A posição 0,0 cm corresponde à meia altura do elemento de combustível, a cota positiva à zona mais profunda e a negativa ao topo do elemento.	77
Figura 5.3. Perfil vertical do fluxo de neutrões acima de 1 MeV entre placas de combustível.	78

ÍNDICE DE TABELAS

Capítulo 2	
Tabela 2.1. Principais parâmetros nucleares dos detectores de activação utilizados.	39
Tabela 2.2. Resultados de PIXE.	47
Tabela 2.3. Desvanecimento térmico do Red 4034 perspex irradiado no RPI com diferentes valores de dose.	51
Capítulo 3	
Tabela 3.1. Fluxo equivalente de cisão em três posições do tubo E4 e fluxo de neutrões rápidos ($E > 1$ MeV).	58
Capítulo 4	
Tabela 4.1. Condições de irradiação na grelha do núcleo.	65
Tabela 4.2. Taxa de dose de fotões e fluxo de neutrões rápidos nas posições da grelha do núcleo a 1MW.	69
Tabela 4.3. Taxa de dose de fotões obtida com três métodos diferentes em posições da grelha a 100kW.	74
Capítulo 5	
Tabela 5.1. Fluxo de neutrões a meia altura do combustível.	78

0 - INTRODUÇÃO

0.1 - Motivação e objectivos

O Reactor Português de Investigação (RPI) instalado em Sacavém, atingiu a criticidade pela primeira vez no dia 25 de Abril de 1961 e é neste momento o único reactor de investigação da Península Ibérica. É um reactor do tipo piscina, com núcleo exposto e opera até à potência máxima de 1 MW. Na altura da realização da maior parte do trabalho experimental o núcleo era composto por elementos de combustível com urânio enriquecido em 93% de ^{235}U [MAR80]. Em 2007 foi feita a conversão deste combustível para um de baixo enriquecimento (19,75% na forma de $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ e densidade $4,8 \text{ gU/cm}^3$) dentro do projecto POR/4/016 da AIEA (Agência Internacional de Energia Atómica). Os elementos de combustível são do tipo MTR ("Materials Testing Reactor") e foram fabricados pela AREVA-CERCA. Os estudos de segurança foram feitos pelo ITN com a colaboração do Argonne National Laboratory (USA) [MAR05b, MAT06, MAR07 e MAR08].

O RPI tem sido utilizado em experiências de irradiação de amostras de natureza diversa, no âmbito de projectos de investigação que exigem um conhecimento das distribuições espaciais e energéticas dos campos de neutrões e fótons nos locais de irradiação [OLI05]. Actualmente, as actividades no RPI abrangem várias áreas de investigação que vão desde a irradiação de circuitos electrónicos [FRA05] até à calibração de detectores para a investigação de matéria escura [FEL10], passando por outras mais convencionais tal como a análise por activação com neutrões [DIA07]. Estas actividades requerem uma dosimetria específica para cada caso. A necessidade de monitorizar o campo em cada irradiação, tão próximo quanto possível das amostras a irradiar, levou ao desenvolvimento, implementação e validação de métodos modernos adequados à dosimetria dos campos mistos de radiação típicos dos reactores de investigação [IAE63 e IAE70].

Num reactor do tipo do RPI, o campo de neutrões é facilmente caracterizado pelo método da activação de detectores com neutrões. No entanto, a dosimetria de fotões em campos mistos apresenta características particulares. A aplicação em campos mistos de métodos usados na caracterização de campos puros de fotões não é simples, uma vez que a maior parte dos detectores de fotões são também sensíveis a neutrões, não permitindo fazer a distinção entre fotões e neutrões, e, além disso os detectores vão sendo danificados com a exposição aos neutrões. Outras dificuldades inerentes à caracterização dos campos de radiação dos reactores nucleares resultam da complexidade dos espectros de fotões e dos elevados níveis de dose frequentemente envolvidos.

A dosimetria com materiais termoluminescentes (TL) ou seja, com materiais que por aquecimento libertam, sob a forma de luz, energia que absorveram previamente de radiação ionizante, apresenta vantagens significativas em relação a outros métodos. Os dosímetros TL apresentam vantagens quase únicas, tais como a elevada sensibilidade e a resolução espacial, a simplicidade de manuseamento, a existência de materiais com baixa sensibilidade a neutrões e ainda a reutilização quase imediata do dosímetro. A aplicação de dosímetros TL tem vindo a estender-se à dosimetria de campos mistos de neutrões e fotões em complemento à sua utilização habitual na dosimetria de fotões e electrões [HOR84].

Os dosímetros TL disponíveis no mercado, desenvolvidos para baixas doses de fotões (ou seja, para dosimetria pessoal e ambiental) não são adequados para medir as elevadas doses de fotões frequentemente presentes em reactores nucleares. Para a medição de doses elevadas e dosimetria em caso de acidente foram desenvolvidos no *Institute of Isotopes and Surface Chemistry* (IKI - Hungria) dosímetros TL cerâmicos de óxido de alumínio dopado com Mg e Y, $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ [OSV93]. A baixa sensibilidade a neutrões com energias inferiores a 4 MeV torna estes materiais particularmente úteis na determinação de doses de fotões em reactores nucleares [OSV96]. Estes dosímetros TL de $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ têm sido usados na determinação de doses de fotões em feixes de neutrões instalados no RPI [FER03 e FER04].

A utilização destes dosímetros TL de $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ estende-se actualmente à determinação de neutrões rápidos em aceleradores de partículas [RAN83]. A sensibilidade do óxido de alumínio a

neutrões rápidos advém principalmente da activação do alumínio, através da reacção $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ (com energia de limiar de 7,3 MeV e secção eficaz média de cisão de 0,685 mb) e subsequente decaimento do produto da reacção com uma semi-vida de 14,959 h [RAN83].

Um dos objectivos deste trabalho é investigar o $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ na detecção de fotões e de neutrões rápidos (> 7 MeV) em campos mistos e, como complemento, avaliar a possibilidade de introduzir um detector comercial, o perspex vermelho da Harwell Technologies (polimetilmetacrilato, PMMA).

O perspex vermelho foi desenvolvido nos anos 60 e desde então, tem vindo a revelar-se eficaz na monitorização de doses de fotões durante a esterilização de produtos médicos [ISO95], ou, durante a pasteurização de produtos alimentares em campos puros de fotões [WHI70]. A utilização destes detectores constitui, devido ao seu baixo custo, fácil aquisição comercial, simplicidade de manipulação e também devido à sua natureza, um processo expedito de determinar doses de radiação até aos 50 kGy na monitorização de experiências [WHI70].

Neste trabalho, investigam-se as propriedades dosimétricas do perspex vermelho em campos mistos de radiação, sob temperaturas entre os 30-40 °C e condições de humidade adversas. Com o uso do perspex vermelho espera-se aumentar o limite de detecção a fotões que se atinge com o $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ e ter um material pronto a utilizar, dando resposta a qualquer solicitação que surja em radiometria, sem requerer qualquer preparação prévia. O perspex, ao contrário do $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$, não necessita de regeneração térmica e os dosímetros da Harwell Technologies são fornecidos já selados em sacos individuais com a referência ao lote marcada no saco. Cada lote de dosímetros é calibrado num irradiador de ^{60}Co e os valores da calibração são fornecidos juntamente com os dosímetros. O $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$ requer uma regeneração térmica e uma calibração específica para se obterem resultados com boa precisão. São ainda sensíveis à radiação ultravioleta o que obriga a protegê-los da luz durante e após a irradiação.

0.2 – Aplicações no RPI

No presente trabalho, pretendem-se validar duas metodologias que permitem discriminar fótons e neutrões rápidos num campo misto de radiação: explorando as propriedades dosimétricas do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ e do perspex vermelho. Estas metodologias são testadas na caracterização do núcleo do RPI e, no caso do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, é testado primeiro no feixe de neutrões rápidos implementado no RPI [MAR05a] onde as taxas de dose de fótons e os fluxos de neutrões são menos elevados do que junto ao núcleo.

Com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ a dose de fótons no campo misto é medida praticamente após a irradiação. Utilizando o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ como um dosímetro TL convencional, são necessários procedimentos específicos de calibração e utilização para ter medidas com boa precisão [ISO96]. A componente de neutrões rápidos (> 7 MeV) é caracterizada explorando a activação do alumínio através de dois métodos:

- Usando o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ como um detector de activação, onde o fluxo de neutrões rápidos (número de partículas por unidade de área e de tempo) é determinado com base na medida da actividade do ^{24}Na produzido; e,
- Considerando o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ como um dosímetro TL que acumula, durante um período de armazenamento, uma dose de fótons decorrente do decaimento dos produtos de activação.

A utilização do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ como um detector de activação requer a determinação da sua composição elementar. Para esse efeito, efectuou-se a análise quantitativa multielementar do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ pelas técnicas de INNA (*Instrumental Neutron Activation Analysis*) [MAR95] e de PIXE (*Particle-Induced X-ray Emission*) [REI92], disponíveis no ITN.

O perspex vermelho apresenta variações nas suas propriedades ópticas, em particular nos seus espectros de absorção do ultravioleta e do visível, quando irradiado com fótons. Fazendo uma análise por espectrofotometria relaciona-se este efeito com a dose absorvida, tornando possível o seu emprego como dosímetro de fótons. Com essa finalidade utiliza-se um método relativo, isto é, obtém-se previamente uma curva de calibração dose de radiação versus absorvância específica

(absorvância/cm de perspex), irradiando detectores de perspex numa fonte calibrada de radiação gama e analisando depois os seus espectros de absorção num espectrofotómetro [FAI98 e ISO06]. Com a curva de calibração determinam-se as doses de radiação absorvidas por detectores irradiados em idênticas condições.

Para a obtenção das curvas de calibração dos dosímetros utilizados nas duas técnicas aqui testadas utilizaram-se três fontes de ^{60}Co distintas: duas do Laboratório de Metrologia de Radiações Ionizantes e Radioactividade (LMRIR) do ITN e outra da Unidade Tecnológica de Radioesterilização (UTR) do Centro de Higienização por Ionização de Produtos (CHIP) no ITN.

Para avaliar a exactidão das presentes metodologias na determinação das diferentes componentes do campo misto, foi feita uma caracterização do núcleo e do feixe de neutrões rápidos através de métodos convencionais: utilizaram-se detectores de activação com neutrões na determinação de fluxos de neutrões e uma câmara de ionização para medição de doses de fotões.

No sentido de diminuir as incertezas na determinação dos fluxos de partículas é necessário seguir boas práticas de calibração e tentar uniformizar as condições experimentais. Um dos parâmetros que tem mostrado grande relevância nos resultados, de forma a se poder comparar os resultados deste trabalho obtidos com as diferentes metodologias, ou com outros resultados publicados na área da dosimetria de campos mistos [FER03, FER05, MAR91] é a monitorização da potência do reactor. Torna-se assim necessária uma medição cuidadosa da potência durante as irradiações e após grande parte experimental deste trabalho estar concluída, passou-se à instalação de um sistema de registo contínuo do canal ^{16}N [SAN11] que permite monitorizar a potência do reactor durante as irradiações.

0.3 – Memória da tese

Esta dissertação está dividida em seis capítulos. O capítulo 1 contém a parte teórica em que se referem as características do campo de radiação num reactor nuclear e as dificuldades associadas à dosimetria desse campo de radiação. As principais técnicas utilizadas na caracterização do

campo de radiação – activação com neutrões, dosimetria por termoluminescência e espectrofotometria com perspex – são sucintamente descritas.

Os capítulos 2 ao 5 compõem a parte experimental. O capítulo 2 é dedicado ao material e métodos utilizados. Neste capítulo descrevem-se as diferentes fontes de radiação utilizadas, o que inclui uma breve descrição do núcleo do RPI e do feixe de neutrões rápidos onde decorreram as irradiações. Apresentam-se também os vários detectores de radiação e respectivas propriedades dosimétricas, todo o equipamento envolvido e técnicas utilizadas neste trabalho na caracterização dos campos mistos de radiação do RPI. Nos capítulos 3 e 4 apresenta-se detalhadamente a caracterização do campo de radiação misto na grelha do núcleo e no feixe de neutrões rápidos pelas técnicas apresentadas, descrevem-se as irradiações e apresentam-se os resultados. No capítulo 5 determinam-se as características gerais do campo de neutrões entre os canais de água dos elementos frescos do núcleo N3-P1/1, i.e., núcleo 3 (combustível novo, enriquecido a 19.75%) na secção 1 da piscina e sendo 1 o número de ordem da configuração crítica. O capítulo 6 apresenta as conclusões do trabalho e as perspectivas de futuro dando continuidade ao trabalho iniciado e desenvolvido nesta dissertação.

1 – CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS

1.1 – Campo de radiações de um reactor nuclear

Um reactor nuclear é uma fonte de neutrões e de fótons, podendo ser utilizado de múltiplas maneiras e com objectivos muito diversificados [BEL70]. Os neutrões provenientes directamente da cisão nuclear do ^{235}U têm uma energia média de 2 MeV, mas a sua energia pode exceder os 10 MeV. Na sua interacção com os materiais que entram na constituição do reactor, em especial com o moderador, os neutrões podem sofrer reacções de dispersão, das quais resulta a perda de energia cinética por transferência para os núcleos atómicos com que estes colidem. Após um certo número de colisões, os neutrões que não tenham sido entretanto absorvidos, ficam em equilíbrio térmico com o meio moderador e a sua energia pode ficar reduzida a valores da ordem dos meV. Sendo assim, os neutrões existentes na vizinhança do núcleo de um reactor nuclear bem moderado, tal como o RPI, têm um espectro de energia que se estende desde os 10^{-3} até aos 10^7 eV.

Para caracterizar qualitativa e quantitativamente este tipo de campo de radiação, é corrente utilizar detectores de neutrões por activação, envolvidos ou não por filtros de cádmio, o que os torna mais ou menos sensíveis a certas zonas do espectro. Dado que a chamada “energia de corte” do cádmio é da ordem de 0,5 eV, na prática adopta-se a seguinte classificação em termos espectrais:

- Neutrões rápidos: $E \geq 0,1 \text{ MeV}$;
- Neutrões epitérmicos: $0,5 \text{ eV} < E < 0,1 \text{ MeV}$;
- Neutrões térmicos: $E \leq 0,5 \text{ eV}$.

Cada um destes grupos de energia é caracterizado por um espectro de energia próprio e por processos de interacção com a matéria característicos ou predominantes. Considera-se assim, que

num reactor com combustível enriquecido em ^{235}U , a fórmula de Watt ($\exp(-E)\sinh(2E)^{1/2}$), modificada pela introdução de constantes numéricas sugeridas por Cranberg descreve com razoável aproximação o espectro de neutrões rápidos, ϕ_{rap} sendo E a energia do neutrão expresso em MeV [BAA89]:

$$\phi_{\text{rap}}(E) = 0,45274 e^{-1,036E} \sinh(\sqrt{2.29E}) \quad (1.1)$$

Um estudo detalhado do processo de moderação mostra que o espectro na região epitérmica, ϕ_{epi} , varia aproximadamente com o inverso da energia cinética dos neutrões:

$$\phi_{\text{epi}}(E) = \theta / E \quad (1.2)$$

θ é uma constante de normalização, que também representa o fluxo de neutrões com energia $E = 1$ eV e é a grandeza com que frequentemente se caracteriza a zona epitérmica do espectro neutrónico.

E por último, considerando um verdadeiro estado de equilíbrio entre os neutrões e os átomos do moderador, ou seja, num meio infinito, homogéneo e não-absorvente, o espectro de neutrões térmicos, $\phi_{\text{th}}(E)$, pode ser descrito por uma distribuição maxwelliana da energia dos neutrões, à temperatura do moderador:

$$\phi_{\text{th}}(E) = AE / (KT_0)^2 e^{-E / (KT_0)} \quad (1.3)$$

Em que A é uma constante de normalização, K a constante de Boltzmann e T_0 a temperatura do moderador. A velocidade mais provável desta distribuição à temperatura $T_0 = 293,6$ K é $v_0 = 2200$ m/s, à qual corresponde a energia $E_0 = 0,0253$ eV.

Sendo assim, o espectro neutrónico global de um reactor moderado tem a forma geral representada na Figura 1.1.

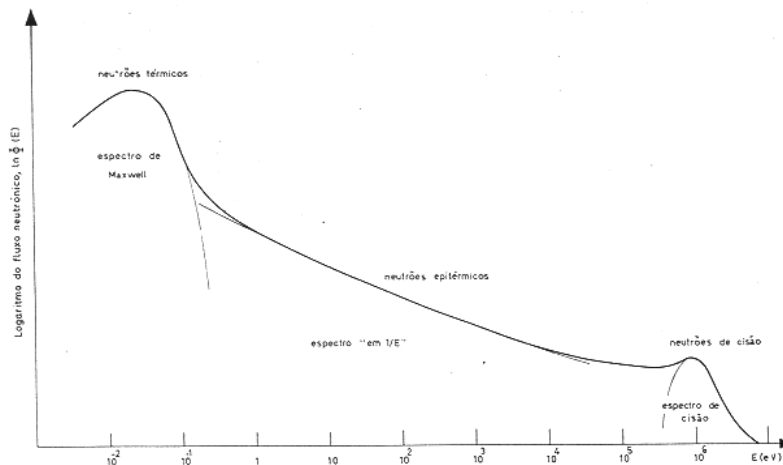


Figura 1.1. Espectro neutrónico de um reactor a neutrões térmicos.

Para além dos neutrões, o campo de radiações de um reactor nuclear tem sempre uma componente de fotões proveniente:

- Directamente da cisão nuclear, isto é, os fotões emitidos instantaneamente no decurso da reacção;
- Do decaimento dos múltiplos produtos de cisão, directos e indirectos, com semi-vidas compreendidas entre fracções de segundos e milhares de anos; e,
- Da captura radiativa de neutrões nos diversos materiais que entram na constituição do reactor (combustível, moderador, fluido de refrigeração, materiais estruturais, etc.) e do decaimento dos isótopos produzidos.

O campo de fotões de um reactor nuclear é caracterizado por um espectro muito complexo, estendendo-se o intervalo de energia até cerca de 10 MeV. Num reactor em funcionamento o termo dominante é o primeiro acima enunciado, enquanto que num reactor parado o termo dominante é, normalmente, o segundo.

1.2 – Dosimetria num reactor nuclear de investigação

Uma vez que o campo de radiações de um reactor nuclear é misto, ou seja, constituído por diferentes partículas, e, que cada tipo de partícula produz em geral efeitos diferentes, interessa

distinguir as doses relativas a cada tipo de partícula [OLI75]. Num reactor nuclear há que considerar sobretudo os neutrões e uma indissociável componente de fótons como mencionado atrás. A discriminação das doses de neutrões e de fótons requer materiais e métodos adequados, uma vez que a maioria dos detectores é sensível às duas componentes.

Quanto à radiação gama é necessário conhecer a taxa de dose de fótons existente no local da irradiação. Há vários métodos para determinar taxas de dose de fótons em campos mistos [GRE81] e no RPI já foram utilizadas as seguintes técnicas [OLI75]:

- Recorrendo a um calorímetro, instrumento com sensor em grafite, que consiste num método absoluto;
- Utilizando câmaras de ionização, que permitem determinar doses de radiação através das ionizações produzidas num gás;
- Com dosímetros à base de materiais orgânicos, em que é medida a variação da densidade óptica por espectrofotometria; e,
- Usando dosímetros TL, que têm demonstrado vantagens únicas em relação às outras técnicas.

Quanto aos neutrões é necessário cobrir toda a gama do espectro neutrónico indicado na Figura 1.1. Existe um elevado número de métodos experimentais adequados a este efeito [CRO85], porém estas técnicas têm limitações em termos da resolução em energia e intervalos de sensibilidade, pelo que se recorre como complemento à simulação computacional. Uma das técnicas mais usadas para determinar fluxos de neutrões térmicos, epitérmicos ou rápidos consiste na utilização de detectores por activação ou de cisão.

Como foi dito, o conhecimento do espectro e da fluência de partículas num reactor desempenha um papel de relevo na análise dos resultados de experiências que nele são feitas. Deve procurar-se uniformizar as maneiras de proceder, de forma a ser possível comparar os resultados experimentais obtidos num dado domínio de investigação. Há que ter em conta que a potência e portanto, os fluxos sofrem variações no tempo, e que, as posições das barras, as variações locais

da queima do combustível e os dispositivos experimentais provocam variações espaciais dos fluxos de neutrões e de fótons [LAM66].

As variações temporais estão relacionadas com o controlo e a operação do reactor: o envenenamento do núcleo, a curto prazo, essencialmente devido ao ^{135}Xe , e a queima de combustível, a longo prazo, requerem consideráveis alterações das posições das barras de comando para manter a potência estável [MAR80]. Daí resultam alterações dos perfis dos fluxos de neutrões e de fótons no núcleo e no reflector.

As variações espaciais resultam dos gradientes de fluxo (neste sentido, uma incerteza na localização da amostra pode provocar erros apreciáveis nas determinações dos fluxos), dos efeitos de protecção devidos aos suportes em que os detectores são colocados e das perturbações introduzidas pelas barras de comando, pelo próprio suporte ou pelos detectores (p.ex., depressão de fluxo de neutrões térmicos) [MAR95, MAR02 e BAA89].

Sempre que possível é aconselhável, tendo em conta o que foi dito, que as técnicas utilizadas sejam aplicadas à potência máxima do reactor, ou pelo menos, numa segunda-feira de modo que cada experiência corresponda praticamente ao mesmo estado inicial do núcleo (após paragem do reactor durante dois dias e consequente decaimento do ^{135}Xe). Caso contrário, justifica-se um controlo mais cuidadoso da potência para escalonar os resultados para a potência máxima e poder comparar resultados obtidos em diferentes irradiações. Actualmente dispõe-se de um sistema rápido de monitorização de potência, mas, na altura da realização de grande parte deste trabalho utilizava-se o valor do potenciómetro “power demand” na consola de comando do reactor, que permite ajustar a potência numa escala linear [MEN97] para corrigir o valor da potência. Para controlar o valor da potência durante as irradiações deve manter-se inalterado o valor do potenciómetro, ou, ajustar o valor logo após a irradiação: subindo a potência do reactor até 1 MW e comparando o valor assim obtido, com o valor durante a irradiação. Obtém-se assim, um factor de correcção de potência, k .

Quanto à medição do tempo de irradiação dos detectores, há que ter em conta todo o processo de irradiação: desde a colocação da amostra no local de irradiação; ao arranque do reactor (subida de

barras) e subida de potência (a partir do ponto crítico) da potência inicial P_0 até à potência pretendida P_t ; ao intervalo de tempo em que a amostra fica à potência P_t ; até à paragem do reactor (introdução das barras) e retirada da amostra.

É necessário ainda ter em conta que, tanto na fase de subida de potência (a partir do ponto crítico) como na fase de descida, a potência do reactor aumenta ou decresce exponencialmente no tempo [MAR77]. Sendo assim, os detectores são irradiados não só no intervalo de tempo sob a potência P_t , como também, nas fases de subida e descida de potência, a uma potência abaixo de P_t .

Na maioria das experiências a contribuição nas fases de subida/descida não é importante, no entanto, há casos em que é necessário medir com rigor o tempo de irradiação. Por exemplo, se o tempo de irradiação pretendido for muito curto, entre 15 e 30 minutos, há que ter em conta o efeito da irradiação dos detectores nestas duas fases.

Estudos sobre a medição de tempos de irradiação mostraram que a potência à qual se deve começar a contagem do tempo de irradiação P_i , no instante t_i é:

$$P_i(t_i) = P_t e^{-1+(P_0/P_t)}, \quad (1.4)$$

e portanto, se a potência inicial for muito inferior à potência pretendida ($P_0 < 0.02P_t$):

$$P_i(t_i) = 0.37P_t. \quad (1.5)$$

Na prática, a contagem do tempo de irradiação deve iniciar-se no instante em que se atinge 37% da potência a que se vai realizar a irradiação, independentemente do período com que se procede à subida de potência do reactor. Isto corresponde a começar a contagem de tempo no instante $t_i = t_{Pt} - t_a$, sendo t_{Pt} o tempo em que os detectores estão à potência pretendida P_t e t_a o intervalo de tempo em que a potência aumenta de um factor e ($= 2.718$).

No caso em que não se possa considerar $P_0 < 0.02P_t$ calcula-se o nível de potência a que se deve iniciar a contagem do tempo de irradiação através da expressão (1.4) [MAR77].

Finalmente, as barras devem ser introduzidas (paragem do reactor) no instante t_β , correspondente ao período de atenuação da potência, antes do fim da irradiação à potência P_i . O tempo de irradiação t_{irr} contabilizado será $t_{irr} = t_\alpha + t_{Pt} + t_\beta$.

Deste modo procuram-se minimizar os erros decorrentes da contagem de tempo da irradiação, tanto mais significativos quanto menor for esse tempo. No entanto, outros problemas podem surgir devido a irradiações de longa duração e/ou sob fluxos muito elevados. Há que encontrar as condições que minimizem os erros associados às condições experimentais.

1.3 - Noções gerais sobre a activação com neutrões

A técnica da activação com neutrões é utilizada em diversas aplicações no âmbito da Física Nuclear e é um dos métodos mais utilizado na caracterização experimental do campo de neutrões em reactores nucleares.

Na activação de detectores com neutrões, são produzidos radionuclidos mediante reacções de captura radiativa ou de transmutação nuclear que ocorrem em resultado da interacção dos neutrões com os nuclidos constituintes dos detectores. A actividade de um determinado produto de reacção é identificada através da análise do espectro dos fotões emitidos durante o decaimento radiativo do detector irradiado. A medição da actividade induzida pela exposição ao campo de radiação dá assim informação sobre o campo de neutrões.

A actividade por átomo-alvo, de um detector de neutrões térmicos e epitérmicos (cuja secção eficaz para neutrões rápidos seja desprezável) irradiado durante um tempo infinito, ou seja, a actividade de saturação, é dada pela expressão [MAR95]:

$$A_{sat} = \sigma_0 \phi_0 + I\theta, \quad (1.6)$$

Sendo σ_0 a secção eficaz microscópica de captura radiativa para neutrões com energia igual a 0,0253 eV, ϕ_0 o fluxo de neutrões térmicos e I o integral de ressonância. Experimentalmente, a discriminação entre as duas componentes térmica e epitérmica é possível irradiando dois detectores, dos quais um é envolvido num filtro de cádmio. Os filtros de cádmio com 1 mm de espessura absorvem os neutrões com energias abaixo da energia de corte do cádmio.

A conversão entre a actividade medida e a actividade de saturação inclui os seguintes factores [LOP86 e MAR91]:

1. O factor de correcção de potência, k , no caso de a irradiação não se realizar à potência nominal do reactor;
2. Um factor correctivo do tempo de irradiação, t_{irr} , que tem em conta o facto de esta decorrer durante um tempo finito;
3. Um factor correctivo do decaimento da amostra entre o fim da irradiação e o início da medida, t_{dec} ;
4. Um factor correctivo do decaimento da amostra durante a medida, t_{med} ;
5. A probabilidade de emissão do fotão pelo radionuclido, p [BAA89];
6. A eficiência do sistema de detecção, ε_γ ;
7. Um factor correctivo da perturbação do campo de neutrões térmicos e epitérmicos, F_{th} e F_{epi} , induzida pela absorção de neutrões no interior do detector, que os impede de continuarem a dispersar-se no meio circundante e reduz a intensidade média do campo de neutrões no volume do detector. Esta perturbação depende da geometria e natureza do detector [MAR95, MAR02 e BAA89].
8. Um parâmetro, g , do formalismo de Westcott [MAC69 e MAR95] que tem em conta o facto da secção eficaz do detector não seguir a lei em $1/v$ na zona térmica do espectro neutrónico, nem a distribuição neutrónica ser puramente Maxwelliana. Valores para este parâmetro encontram-se também na literatura [BAA89].
9. Um factor correctivo do filtro de cádmio, F_{cd} , que tem em conta a inevitável absorção de neutrões epitérmicos pelo cádmio, com energias compreendidas entre 0,1 eV (energia convencional de separação entre neutrões térmicos) e os 0,5 eV. Este factor depende da espessura do cádmio, da geometria e da natureza do detector [MUE73].

Por fim, a actividade medida por núcleo-alvo do detector irradiado sem o filtro de cádmio é:

$$A = (1 - e^{-\lambda_{\text{irr}}}) e^{-\lambda_{\text{dec}}} \varepsilon_{\gamma} k t_{\text{med}} (\sigma_0 \phi_0 g F_{\text{th}} + I \theta F_{\text{epi}} F_{\text{cd}}) \quad (1.7)$$

Onde $I \theta F_{\text{epi}} F_{\text{cd}}$ diz respeito à actividade do detector irradiado sob o filtro de cádmio.

A actividade de saturação de um detector de neutrões rápidos é dada por:

$$A_{\text{sat}} = \sigma_{\text{ef}} \cdot \phi_{\text{ef}} \quad (1.8)$$

Em que σ_{ef} é a secção eficaz efectiva do detector para o espectro de energia em questão e ϕ_{ef} é o fluxo de neutrões rápidos com energias acima de um valor de limiar efectivo para o detector e para a reacção em causa. Frequentemente, considera-se que o espectro de neutrões rápidos é um espectro de cisão, e, nesse caso, utilizam-se a secção eficaz média de cisão e o fluxo equivalente de cisão para caracterizar o campo de neutrões. O fluxo equivalente de cisão representa um campo de neutrões de cisão capaz de induzir a mesma actividade que o espectro em questão. No caso dos detectores de limiar, os factores correctivos (7 e 8) atrás mencionados não são necessários, uma vez que, em reactores bem moderados como o RPI, o fluxo de neutrões rápidos não é muito elevado e as secções eficazes para os detectores de limiar utilizados nesta região de energias são muito baixas, da ordem dos milibarns.

Para caracterizar um espectro de neutrões rápidos é habitual usar o espectro de cisão do ^{235}U como termo de comparação. Quando o espectro de neutrões rápidos difere do espectro de cisão do ^{235}U , a secção eficaz média de um detector de limiar é distinta da secção eficaz média do espectro de cisão. Assim, os fluxos equivalentes de cisão, calculados com os diferentes detectores, diferem entre si. A discrepância entre o espectro de neutrões e o de cisão, na região de sensibilidade do detector, é parametrizada pelo índice de espectro do detector de limiar [GON82].

O índice de espectro é dado pela razão entre os fluxos equivalentes de cisão de dois detectores com energias de limiar diferentes. Os fluxos de neutrões com energia superior a 1 MeV, são

frequentemente determinados com base na medição da resposta de três reacções de limiar: $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$; $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ e $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$, cujas respectivas energias de limiar são 1,30 MeV, 2,60 MeV e 7,30 MeV [BAA89].

1.4 – Dosimetria por termoluminescência

A termoluminescência, TL, é a emissão de luz durante o aquecimento de um semiconductor ou isolante que absorveu previamente energia da radiação incidente. Quando a quantidade de luz emitida é directamente proporcional à energia absorvida, o material pode ser utilizado como dosímetro de radiação ionizante, isto é, como dosímetro TL. Em geral, a luz considerada encontra-se na região do visível, mas é característico de alguns dosímetros TL emitirem radiação nas zonas do ultravioleta e do infravermelho [HOR84].

O fenómeno da termoluminescência é facilmente entendido através do modelo de bandas de energia. Neste modelo, os electrões num sólido cristalino preenchem normalmente a chamada banda de valência. Se estes electrões receberem energia suficiente da radiação incidente, p.ex., podem alcançar a banda de condução (Figura 1.2. (a) - passo 1). Nesta banda os electrões podem circular livremente, contribuindo para a condutividade eléctrica do material. Entre estas duas bandas existe uma banda proibida aos electrões, o hiato de energia, cujo tamanho determina se se trata de um semiconductor ou de um isolante. Neste hiato podem existir níveis intermédios devidos a defeitos ou impurezas na rede.

No seu percurso pela banda de condução (Figura 1.2. - passo 2), alguns electrões voltam directamente para a banda de valência, enquanto outros ficam aprisionados nos níveis intermédios (Figura 1.2. - passos 3 e 4 respectivamente). Se estas transições forem acompanhadas por emissão de luz, e se esta ocorrer durante a excitação diz-se que ocorreu um fenómeno de fluorescência. Se o electrão se encontrar num nível intermédio e só regressar à banda de valência, emitindo luz, após a supressão da excitação, ocorre um fenómeno de fosforescência.

No caso do nível intermédio ser mais profundo, armadilha - H, torna-se necessário re-promover o electrão à banda de condução fornecendo-lhe energia, que pode ser dada sob a forma de calor (Figura 1.2. (b) - passo 5), para que este repita um dos processos anteriores: cair para a banda de valência ou para um nível intermédio. Se o processo for acompanhado por emissão de luz, está presente o fenómeno da termoluminescência.

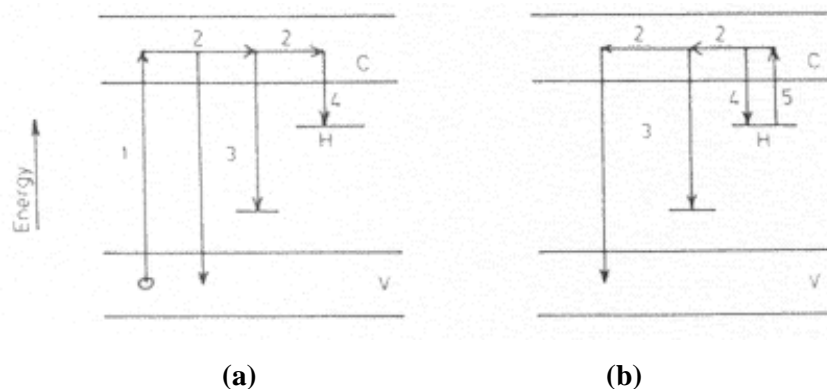


Figura 1.2. Processo da termoluminescência. V – banda de valência, C - banda de condução e H – armadilha. (a) Excitação do material por radiação (b) excitação térmica.

Sendo assim, na dosimetria por termoluminescência [HOR84], é armazenada informação num dosímetro TL por exposição a um campo de radiação. Esta informação é mantida até ao momento da leitura, em que se submete o dosímetro TL a um aquecimento controlado, específico para cada material. Durante o aquecimento, é efectuada a detecção e medição da luz emitida utilizando um fotomultiplicador.

A curva da intensidade da luz emitida em função da temperatura do material designa-se por curva de brilho, e depende fundamentalmente do material, da evolução temporal da temperatura (perfil de aquecimento) e em alguns materiais, do tipo de radiação incidente. Uma curva de brilho pode ter vários picos, onde cada um corresponde a um tipo de defeito. A determinação de parâmetros destas curvas de brilho, tais como a intensidade máxima ou a área sob um ou mais picos, dá informação sobre a energia absorvida pelo dosímetro.

A dosimetria por TL em campos mistos é feita normalmente utilizando dois dosímetros de diferentes sensibilidades, um sensível às duas componentes do campo, e outro, com alta sensibilidade a fótons e baixa a neutrões. A sensibilidade a neutrões provém da existência de determinados isótopos de elevada secção eficaz de reacção com neutrões. A produção de materiais com diferentes enriquecimentos pode variar significativamente a sua sensibilidade relativa a neutrões. Este método tem sido aplicado principalmente na detecção de neutrões térmicos e na estimativa da dose de fótons. Para neutrões rápidos verifica-se uma significativa anisotropia da resposta e uma rápida diminuição da sensibilidade do dosímetro com a energia dos neutrões. No entanto, é possível detectar neutrões rápidos com dosímetros TL sensíveis a neutrões térmicos, envolvidos num moderador.

Outro método de detecção de neutrões rápidos consiste em avaliar o sinal TL induzido pela activação do dosímetro pelos neutrões. Este método, testado neste trabalho, permite determinar as duas componentes, neutrões e fótons, separadamente com um mesmo dosímetro TL. Estes dosímetros são compostos, em geral, por um isótopo que possui uma significativa secção eficaz de reacção de limiar. Sendo assim, têm uma reduzida sensibilidade a neutrões de energias inferiores ao valor de limiar, que os torna úteis para determinar fótons. A sua sensibilidade a neutrões rápidos provém da activação desse elemento pelos neutrões com energias acima desse valor de limiar, produzindo radioisótopos cujo decaimento vai contribuir para o sinal TL.

Neste método, as doses de fótons e de neutrões são avaliadas separadamente com duas leituras do mesmo dosímetro:

- Uma leitura praticamente a seguir à irradiação, possibilitando a determinação da dose de fótons no campo misto;
- Uma segunda leitura, após a regeneração térmica do dosímetro e esperando o intervalo de tempo necessário para que este acumule um sinal TL induzido pela auto-irradiação proveniente dos produtos de reacção. Esta fornece informação sobre a componente de neutrões rápidos responsável pela auto-indução do dosímetro.

A componente de neutrões pode ainda ser determinada, pela medição da actividade resultante da exposição ao campo de radiação, ou seja, utilizando o dosímetro como um detector de activação convencional. Este método é ocasionalmente utilizado em aceleradores de partículas e no presente trabalho, é avaliada pela primeira vez a sua aplicabilidade no RPI.

1.5 – Dosimetria por espectrofotometria óptica

Os métodos espectroscópicos baseiam-se na absorção e/ou emissão de radiação electromagnética pelas moléculas, quando os seus electrões se movimentam entre níveis de energia. A espectrofotometria baseia-se na absorção da radiação nos comprimentos de onda entre o ultravioleta e o infravermelho. Um espectrofotómetro é um instrumento que faz passar um feixe de luz monocromático através de uma solução, e mede a quantidade de luz que foi absorvida por essa solução (lei de Lambert-Beer). O feixe monocromático é obtido pela passagem de luz através de um prisma óptico que a separa em feixes com diferentes comprimentos de onda. O espectrofotómetro permite-nos saber que quantidade de luz é absorvida a cada comprimento de onda, criando um padrão de absorção.

Uma vez que diferentes substâncias têm diferentes padrões de absorção, a espectrofotometria permite-nos, p.ex., identificar substâncias com base no seu espectro. Permite também quantificá-las, uma vez que a quantidade de luz absorvida está relacionada com a concentração da substância. Por vezes uma substância, quando alterada quimicamente, pode passar a apresentar um espectro de absorção diferente. As radiações ionizantes, p.ex., provocam nos materiais que atravessam, o aparecimento de espécies químicas excitadas e ionizadas, electrões e radicais livres. Tais partículas são susceptíveis de migrar através do material, e, no caso dos cristais e de alguns sólidos amorfos (plásticos e vidros), podem ser retidas em determinados locais (imperfeições da rede, átomos de aditivos, etc.) formando centros de absorção óptica. Estes centros dão lugar a uma absorção preferencial em determinados comprimentos de onda do espectro óptico, correspondendo-lhes espectros de absorção característicos [FOW66]. No caso do perspex vermelho quando irradiado com radiação gama os picos de absorção situam-se na zona do visível, mais precisamente a 640 nm.

O número de centros de absorção óptica formados é proporcional ao número de espécies químicas excitadas e ionizadas, electrões e radicais livres originados pela radiação, o qual, por sua vez, varia com a dose absorvida pelo material. O número de centros de absorção óptica e, portanto, a intensidade dos picos de absorção são proporcionais à espessura do detector. A medição da absorvância com um espectrofotómetro corrigida pela espessura de cada dosímetro poderá assim constituir um meio de determinação das doses absorvidas, mediante uma calibração prévia dos detectores.

Como se trata de um método relativo as condições de utilização dos detectores deverão ser tanto quanto possível idênticas às adoptadas na obtenção da curva de calibração. Em especial é aconselhável empregar o mesmo espectrofotómetro e ter em conta o desvanecimento térmico, isto é, a diminuição gradual ao longo do tempo do número de centros de absorção óptica formados pela radiação, que se deve essencialmente à difusão do oxigénio, do exterior para o interior do detector. A taxa a que se processa esta difusão depende de vários factores, obrigando a que, nas aplicações desta técnica se utilize um certo tempo de espera (isto é, o tempo decorrido entre a irradiação dos detectores e a sua leitura) que optimize a resposta do detector. Este tempo de espera deve ser igual ao utilizado na obtenção da curva de calibração.

2 – MATERIAIS E MÉTODOS

2.1 - Fontes de radiação

2.1.1 - O Reactor Português de Investigação

Na altura em que foram realizadas a maior parte das experiências deste trabalho o núcleo do RPI era formado por elementos com urânio enriquecido a 93,2% em ^{235}U , sob a forma de placas planas de uma liga de U-Al. O enriquecimento do combustível foi posteriormente alterado para 19,75%. Os elementos de combustível estão dispostos numa grelha de alumínio (matriz 6 x 9 com malha de dimensão 77,1 mm por 81,0 mm) suspensa por uma ponte móvel, que permite deslocar o núcleo entre os dois compartimentos existentes da piscina [MAR80]. O RPI é moderado e arrefecido a água natural. Além destas duas funções, a água serve como reflector de neutrões e como protecção radiológica.

Além dos elementos normalizados com dezoito placas de combustível cada (N_i , na Figura 2.1), existiam, para controlar a reacção em cadeia, elementos de controlo (C_i , na Figura 2.1), cada um com dois grupos de cinco placas de combustível. Estes dois grupos estão espaçados de forma a permitir a passagem das barras de comando em cádmio – elemento absorvedor de neutrões. Os elementos estão envolvidos por bainhas de alumínio que impedem a passagem para a água dos produtos de cisão.

A configuração do núcleo, ou seja, a disposição dos elementos de combustível e dos reflectores na grelha do núcleo, é modificada sempre que se pretende compensar o consumo de urânio ou alterar as características do campo de neutrões em locais específicos. Uma vez alterada a configuração, torna-se necessário reavaliar o campo de radiação nas zonas de experimentação. Ao longo deste trabalho houve por duas vezes alteração da configuração do núcleo, e mais tarde procedeu-se à conversão para elementos de combustível de baixo enriquecimento (N3-P1/1).

Estas configurações podem ser consultadas na Figura 2.1. (a) N2-P1/8 (b) N2-P1/8a (c) N2-P1/9 e (d) N3-P1/1. A configuração N2-P1/8a é uma pequena variante da anterior N2-P1/8 em que apenas se adicionaram dois blocos de berílio nas posições 25 e 55, diminuindo a fuga de neutrões do núcleo. Na configuração N2-P1/9 o bloco de Be simples que estava na posição 25 foi substituído por um bloco quádruplo, com orifício de irradiação, ocupando as posições 25, 26, 35 e 36. A última configuração, N3-P1/1 inclui quatro elementos de combustível fictícios [MAR08b] nas posições 13, 54, 62 e 63.

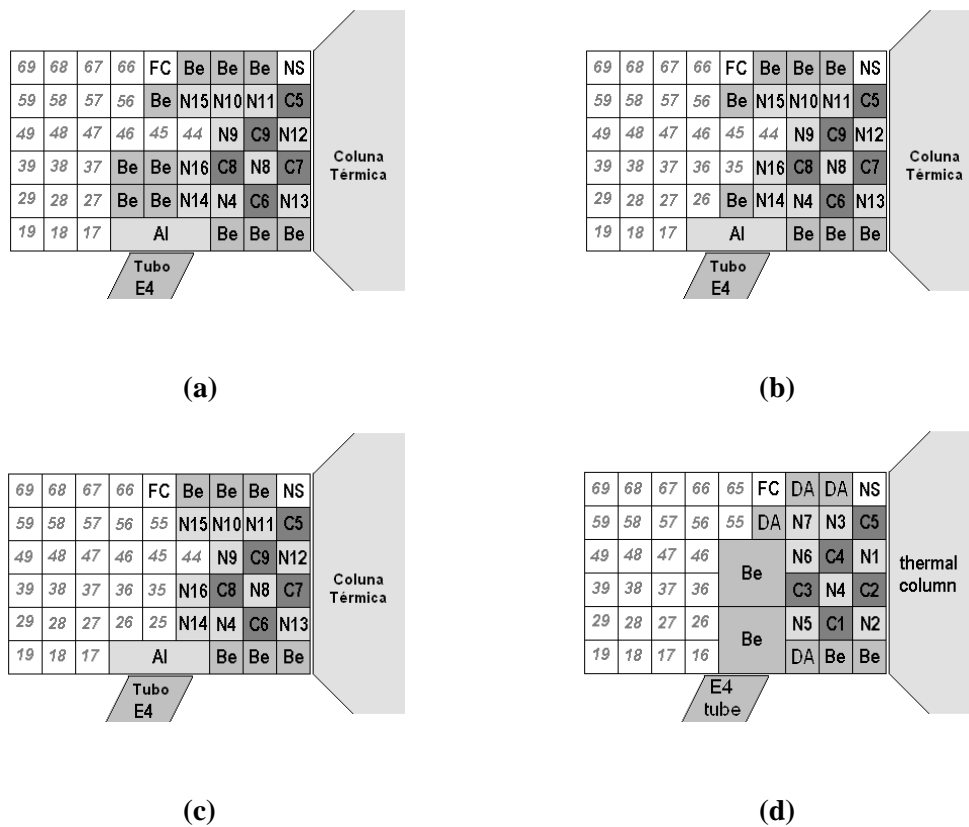


Figura 2.1. Configurações do núcleo do RPI (a) N2-P1/8, (b) N2-P1/8a, (c) N2-P1/9 e (d) N3-P1/1.

N: elemento de combustível normalizado; **C-** elemento de combustível de controlo; **Be** - reflector de berílio; **Al** - bloco de alumínio; **NS** - fonte de neutrões de Sb-Be; **FC** - câmara de cisão; **DA** - elemento de combustível fictício.

Existem vários dispositivos experimentais de irradiação no RPI: sete canais de extracção de feixes de neutrões (seis radiais e um transversal ao núcleo); uma coluna térmica, que consiste

num empilhamento de grafite que modera os neutrões; um sistema pneumático fixo; um sistema pneumático móvel, cujo terminal de irradiação pode ser colocado em qualquer posição disponível da grelha do núcleo; os elementos de combustível fictícios e as posições livres da grelha do núcleo com acesso directo pela piscina utilizando dispositivos apropriados. Na Figura 2.2. apresenta-se a grelha do núcleo e a planta do átrio do reactor, onde se vêem os equipamentos instalados junto aos tubos de extracção de feixe.

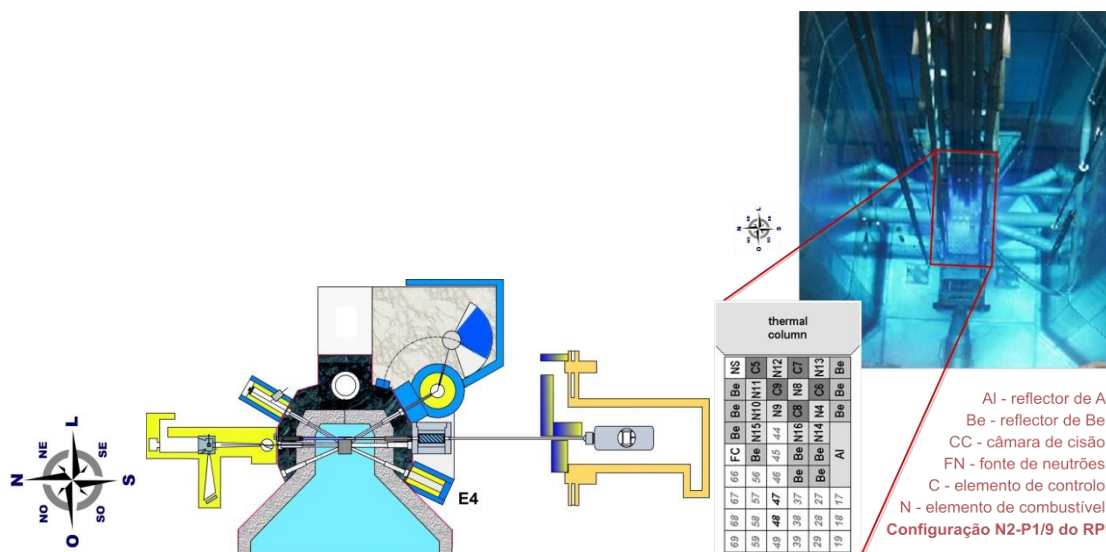


Figura 2.2. Planta da piscina e grelha do núcleo do RPI.

O presente trabalho visa o estudo dosimétrico de posições livres da grelha do núcleo e de um dos canais radiais de extracção de feixe, o tubo E4 (SO – Sudoeste, Figura 2.2). É apresentada também a dosimetria de neutrões entre placas de elementos de combustível frescos do núcleo N3-P1/1.

No tubo E4 está instalado um filtro de chumbo e um de boral que alteram o campo de radiação proveniente do núcleo do reactor, atenuando o campo de fótons e absorvendo grande parte dos neutrões térmicos [MAR05a]. Daqui resulta, um feixe de neutrões rápidos com uma reduzida componente de radiação gama, Figura 2.3. As irradiações podem ser feitas dentro do tubo embebido na parede, com as dimensões ($\varnothing 15 \times 100$) cm, ou na cavidade exterior com as dimensões (60x60x100) cm.

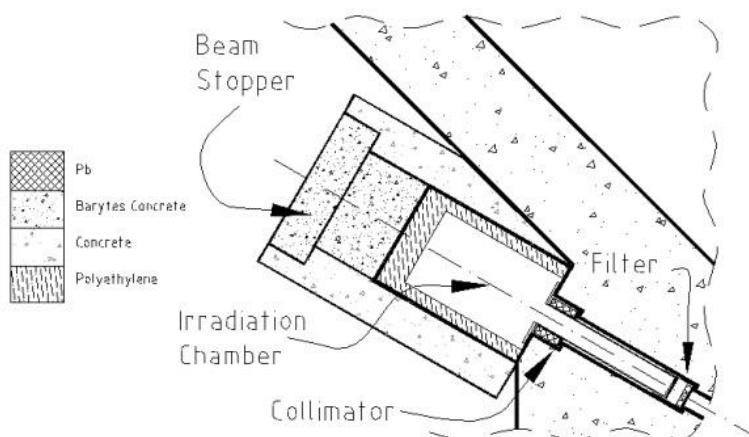


Figura 2.3. Tubo E4, feixe de neutrões rápidos do RPI. Filter: 0,7 cm de Boral (Al-B4C) e 4,0 cm de Pb; Collimator: 27 cm de Pb para protecção biológica; Irradiation chamber (60x60x100) cm.

2.1.2 - O Laboratório de Metrologia de Radiações Ionizantes e Radioactividade

O Laboratório de Metrologia de Radiações Ionizantes e Radioactividade, LMRIR, possui os padrões nacionais de radiações ionizantes e contém diversas fontes de fotões com variadas actividades: fontes de ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{241}Am e Raios-X com diferentes características (ISO4037-1:1996).

As irradiações efectuadas no LMRIR tiveram como objectivo principal a calibração dos dosímetros TL a diferentes níveis de dose (10 mGy – 1 kGy). Utilizaram-se duas fontes distintas de ^{60}Co : uma de elevado débito, inserida num irradiador panorâmico Eldorado 6 (Atomic Energy of Canada), a 1 m da fonte dispõe-se de um campo transversal homogéneo com as dimensões máximas de 40 x 40 cm, com um débito de kerma no ar aproximadamente igual a 163,99 mGy/min em 2006 (300 mGy em 2002); e outra, com um débito de kerma no ar muito mais baixo de 0,095 mGy/min (2006) a 1 m da fonte e num campo de 9,2 cm de diâmetro.

Em geral, os dosímetros são posicionados em suportes universais. No caso dos dosímetros termoluminescentes, optou-se pela utilização de barras metálicas que se ajustam à cabeça do irradiador e ao suporte dos TLD em perspex opaco, Figura 2.4, facilitando o seu posicionamento.

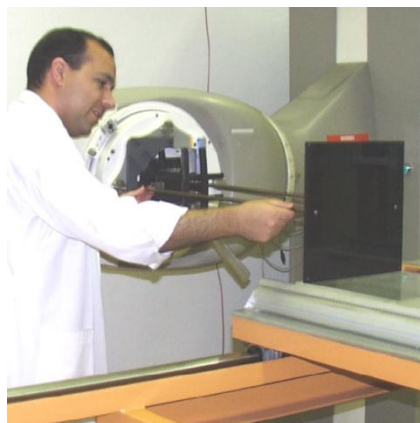


Figura 2.4. Suporte em perspex opaco para irradiação de TLD na fonte de ^{60}Co do LMRIR.

2.1.3 - A Unidade Tecnológica de Radioesterilização

A UTR tem uma câmara de irradiação, representada esquematicamente na Figura 2.5, que consiste em tubos em aço-inox dispostos em geometria planar, dentro dos quais está o ^{60}Co . Esta unidade pode tratar uma grande variedade de produtos de forma segura, económica e fidedigna. A instalação do irradiador e o desempenho do processo estão devidamente qualificados segundo as normas NP EN 552 (2001) e ISO 11137:1995 (E). Quando o irradiador não está em posição de irradiação encontra-se recolhido num escudo que consiste num poço de betão revestido com blocos de ferro. Um sistema electromecânico movimenta o irradiador colocando-o na posição de irradiação.

Nas irradiações realizadas na UTR utilizou-se a placa em perspex opaco (Figura 2.4) como suporte aos detectores $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg},\text{Y}$, posicionando-a numa grelha junto ao irradiador, Figura 2.5, e, tendo como fim verificar a resposta destes dosímetros a doses mais elevadas, ou seja, acima de 1 kGy.

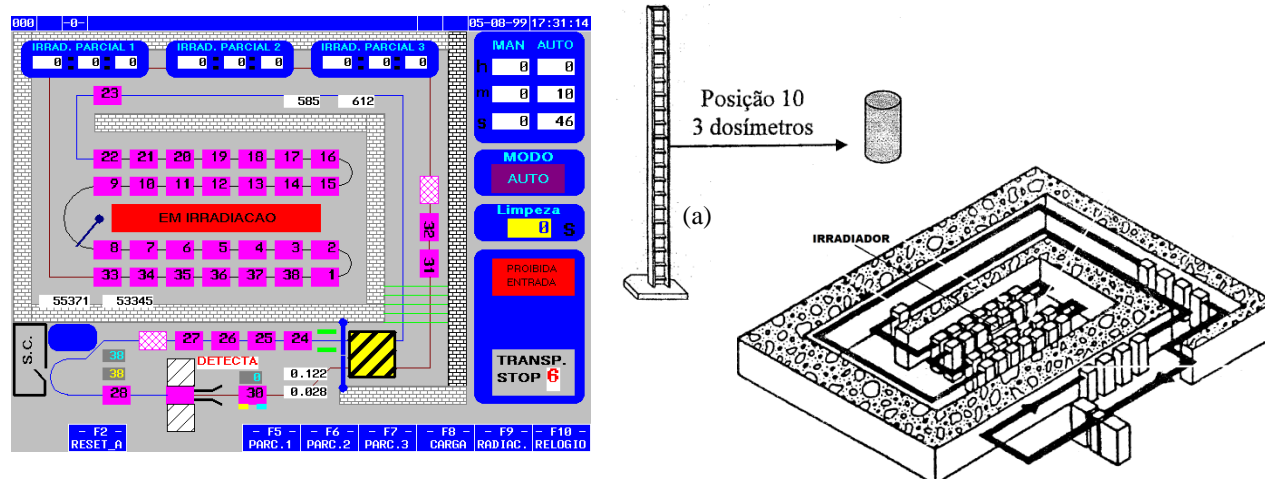


Figura 2.5. Esquema da câmara de irradiação e labirinto da UTR. (a) Estrutura em madeira usada na calibração dos dosímetros perspex vermelho.

Na calibração dos perspex vermelho utilizou-se a posição 10, a contar de baixo, da estrutura em madeira da Figura 2.5. (a), colocada em frente ao irradiador num local devidamente assinalado e previamente calibrado. A calibração desta posição de irradiação faz parte dos procedimentos de calibração de dosímetros da CHIP S.A e é feita pelos operadores. Utilizam o dosímetro cérico-ceroso que é um padrão de referência ou dosímetro padrão de transferência [ISO95] e avaliam as doses absorvidas por estes dosímetros através do método potenciométrico. Em 2006 determinou-se um débito de dose 4,069 kGy/h naquela posição de irradiação.

2.2 – Detectores de radiação

2.2.1 – Detectores de activação com neutrões

Para a espectrometria de neutrões são utilizados materiais com sensibilidade significativa em diferentes regiões de energia, sendo a região de sensibilidade do detector determinada pela secção eficaz da reacção de activação.

A detecção de neutrões térmicos e epitérmicos é feita recorrendo a reacções de captura, cujas secções eficazes apresentam uma variação em $1/v$ (sendo v a velocidade do neutrão) na zona

térmica, à qual se sobrepõem ressonâncias na zona epitérmica. A detecção de neutrões rápidos é obtida com base em reacções de limiar. A secção eficaz de um detector de limiar apresenta uma forma em patamar que o torna insensível aos neutrões com energias inferiores à energia de limiar, mas permite a determinação do espectro acima desse limiar – Figura 2.6.

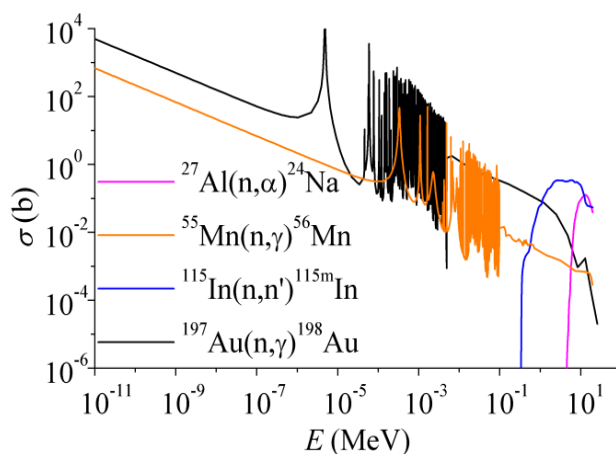


Figura 2.6. Secção eficaz de reacções de activação utilizadas na detecção de neutrões térmicos (Mn, Au), epitérmicos (Mn, Au) e rápidos (In, Al).

Na escolha de um detector de activação há que considerar entre outras propriedades importantes a secção eficaz de activação, a semi-vida do produto de reacção e as reacções secundárias. A reavaliação e reutilização destes detectores dependem da semi-vida do isótopo activado. Além disso são materiais resistentes, pequenos e fáceis de manusear.

As propriedades mais relevantes dos detectores de activação utilizados neste trabalho estão na Tabela 2.1 e encontram-se descritas na literatura [BAA89]. Os detectores usados têm a forma de discos finos com diâmetro de 2 a 15 mm e espessuras da ordem dos 0,025 mm.

Tabela 2.1 – Principais parâmetros nucleares dos detectores de activação utilizados [BAA89]

Reacção	Energia de limiar (MeV)	Secção eficaz	Semi-vida do produto da reacção	Energia do fóton detectado (keV)	Prob. de emissão (%)
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	—	$\sigma_0 = 98,65(9) \text{ b}$	2,696(2) d	411,804(1)	95,56(7)
$^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$	1,30	$\langle\sigma\rangle_c = 177(21) \text{ mb}$	4,486(4) h	336,241(25)	45,9(2)
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	2,60	$\langle\sigma\rangle_c = 102,3(7) \text{ mb}$	70,82(3) d	810,772(14)	99,44(2)
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	7,30	$\langle\sigma\rangle_c = 0,685(37) \text{ mb}$	14,959(4) h	1368,633(6)	99,994(2)

Sempre que possível, na determinação de neutrões térmicos e epitérmicos, utilizam-se ligas de alumínio com uma reduzida proporção do material detector, neste caso ouro, de forma a minimizar o efeito de perturbação do campo. Para os materiais não diluídos, os factores de perturbação do campo de neutrões térmicos e epitérmicos são avaliados com base em expressões descritas na literatura [BAA89]. Se se pretender remover a activação pelos neutrões térmicos, e assim determinar a componente epitérmica, utilizam-se caixas de cádmio com 1 mm de espessura, intercalando detectores nus com detectores cobertos por cádmio.

A actividade dos detectores irradiados é medida em sistemas de espectrometria gama previamente calibrados em energia, resolução e eficiência. Utilizaram-se dois sistemas de detecção um que integra um detector HPGe de elevada resolução em energia, do Laboratório de Análise por Activação e outro que incorpora um detector de NaI(Tl) com maior eficiência de detecção e menor resolução em energia do que o HPGe, do Laboratório de Radiometria, ambos do ITN. O NaI(Tl) é utilizado na medição de amostras com pouca actividade e com espectros de emissão simples (p.ex. ^{24}Na , ^{198}Au , ^{58}Co). Estes sistemas são constituídos em geral pelo detector que inclui um pré-amplificador e um filtro de tensão, o filtro de tensão antecede a fonte de tensão e o pré-amplificador está ligado a um amplificador seguido de um analisador multicanal - Figura 2.7.

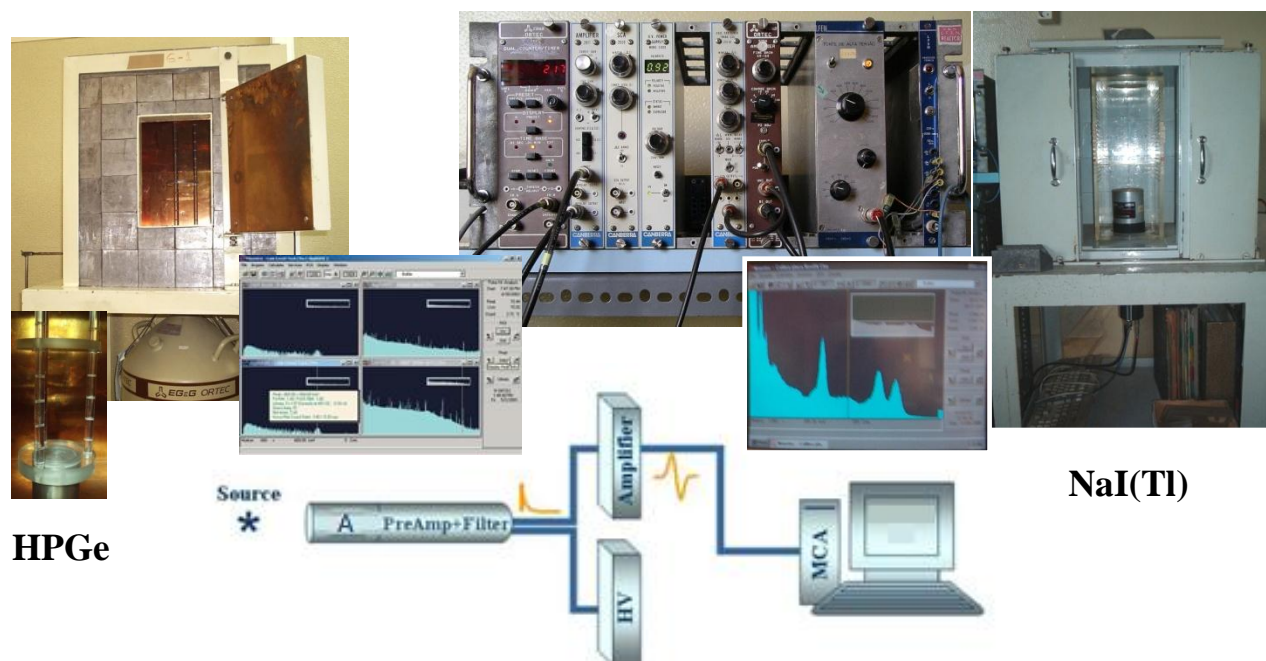


Figura 2.7. Sistemas de espectrometria gama. (a) Detector de cintilação: A. Tubo fotomultiplicador com cristal NaI(Tl) – Harshaw integral line type 12S12/3E; PreAmp + Filter: LFEN; HV: Fonte de alimentação de alta tensão (+840 V) – LFEN; Amplifier: Ortec Mod. 575a; MCA: Analisador multicanal ORTEC TRUMP-2K-32. (b) Detector Hiperpuro de Germânio: A e PreAmp + Filter: ORTEC GEM-25/85; HV. Fonte de alta tensão (3kV); Amplifier: CANBERRA 2200; MCA: Analisador Multicanal CANBERRA ACCUSPEC 3.

2.2.2 – Câmaras de ionização

O mecanismo de detecção de uma câmara de ionização baseia-se na medição da carga gerada no seu interior por acção da radiação incidente. A câmara utilizada neste trabalho é do tipo CRGA 11 e foi fornecida pela firma Radiotechnique Compelec. A câmara tem 1,8 cm de diâmetro e 23,4 cm de comprimento com um volume activo de 38 cm³ e o gás de enchimento é azoto à pressão de 10⁵ Pa. Os cabos de sinal e polarização têm 30 m de comprimento, sendo a parede, o eléctrodo central e a protecção dos cabos em aço inoxidável e perfeitamente estanques, permitindo a sua utilização na piscina do reactor, Figura 2.8. O comprimento dos cabos coaxiais permite que os terminais da tensão e do sinal fiquem emersos e longe da fonte de radiação, ligando-se respectivamente a uma fonte de tensão (-600 V) (Canberra 3002) e a um picoamperímetro

(Keithley 480). O sistema dosimétrico foi calibrado para kerma no ar à mesma tensão de polarização, tendo sido determinada a seguinte constante de calibração $N_k = 2,05 \times 10^{-12} \text{ A}\cdot\text{Gy/s} \pm 3\%$ [FER03].

A elevada sensibilidade a fotões e reduzida a neutrões torna esta câmara adequada na monitorização da dose de fotões nos feixes de radiação e na determinação aproximada da dose de fotões no interior da piscina com o reactor a baixa potência (100 kW). É de antever alguma sensibilidade a neutrões por parte da câmara devido à reacção $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$, embora quanto a isso não se tenham encontrado valores na literatura. Existe uma boa correlação linear entre a potência do RPI (dos 0 aos 100kW) e a resposta da câmara [SIL87]. Devido a anteriores utilizações junto ao núcleo a câmara tem uma actividade residual de $\sim 3 \text{ mGy/h}$ de radiação beta, ao contacto com a câmara, não devendo ser utilizada em campos com baixo débito de dose gama.

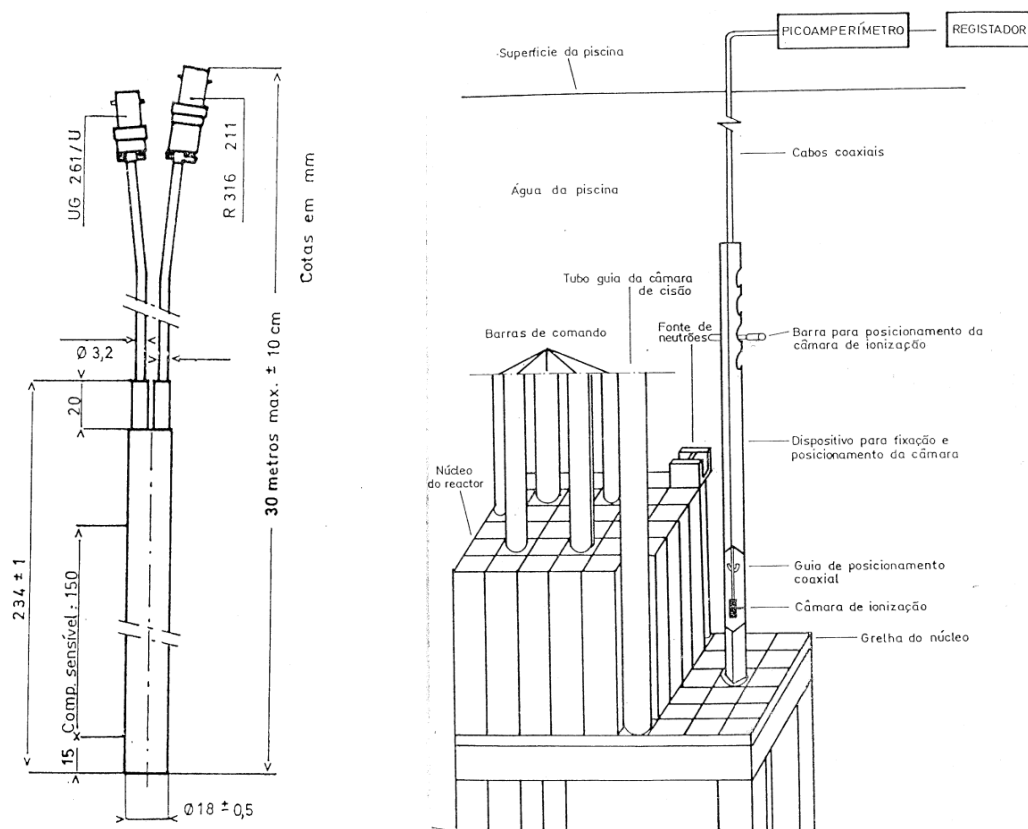


Figura 2.8. Esquema da CRGA11 e do dispositivo de posicionamento no núcleo.

2.2.3 – Dosímetros termoluminescentes de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$

O óxido de alumínio, Al_2O_3 , sob a forma policristalina tem sido frequentemente usado como detector TL, dependendo as suas propriedades TL das impurezas existentes, das condições de preparação e dos tratamentos físicos: manuseamento e regeneração térmica. A estrutura do cristal e os defeitos do Al_2O_3 são responsáveis pelo fenómeno da TL.

Os dosímetros TL têm a vantagem de possuir elevadas sensibilidades e resolução espacial, são facilmente manuseados, de pequenas dimensões, baratos e de reutilização imediata. Têm no entanto, a desvantagem de perderem o sinal TL após o aquecimento, impossibilitando a repetição da sua leitura, e de requererem uma regeneração térmica e uma calibração específica para se obterem resultados com boa precisão. A selecção de um dosímetro TL deve ser feita em função da aplicação visada e das propriedades do material.

Os dosímetros TL de Al_2O_3 utilizados neste trabalho apresentam-se sob a forma de discos cerâmicos com as dimensões ($\varnothing 8 \times 1$) mm - Figura 2.9. Estes detectores foram desenvolvidos no IKI, Hungria, usando sais dos elementos dopantes (Mg,Y) dissolvidos em água e precipitando-os com hidróxido de alumínio [OSV89]. Modificando a concentração de dopantes, produzem-se detectores com uma vasta gama de sensibilidades aplicáveis em diferentes fins dosimétricos. Neste trabalho são utilizados dois tipos de dosímetros, um do tipo D-2 (dopado com 0,5% MgSO_4 e 0,5% Y_2O_3), menos sensível e que se aplica na medição de doses de fotões mais elevadas ($10^{-1} - 10^3$ Gy), e outro, do tipo D-3 (dopado com 1% MgSO_4 e 1% Y_2O_3), mais sensível e útil para níveis de dose de fotões entre $10^{-4} - 10^2$ Gy [FER03].



Figura 2.9. Dosímetros TL cerâmicos de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$.

Estes materiais caracterizam-se por uma resistência mecânica muito elevada, são de fácil manuseamento e excelente linearidade dentro de um grande intervalo de doses. A curva de brilho destes dosímetros é simples, composta por dois picos bem discriminados, às temperaturas de 250 °C e 400 °C, aproximadamente - Figura 2.10. A região de linearidade depende da sensibilidade do material e do pico considerado.

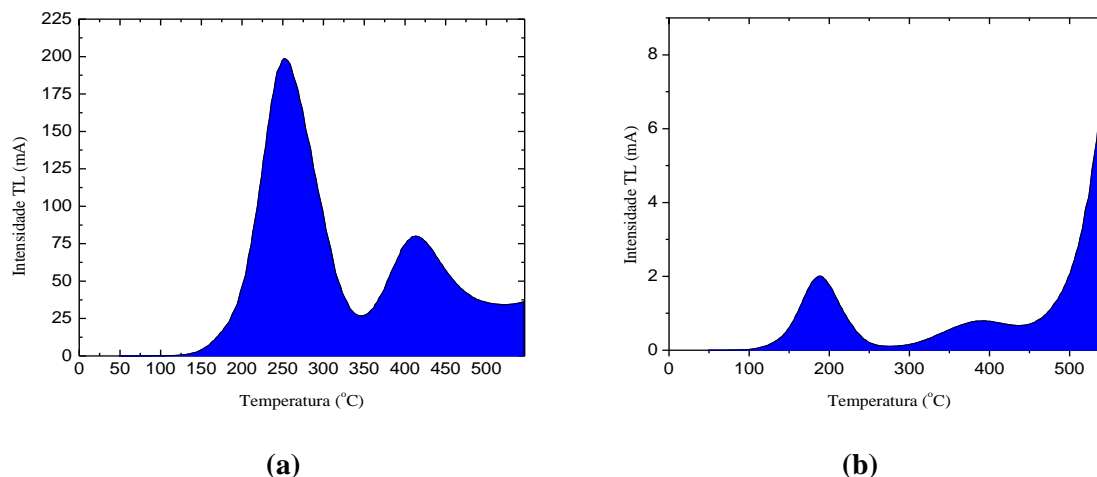


Figura 2.10. Curva de brilho dos dosímetros TL de Al₂O₃:Mg,Y

a) D-2 (dose de fotões: 70 Gy) e b) D-3 (dose de fotões: 2 Gy).

Outra característica do Al₂O₃:Mg,Y, que o torna útil na determinação de doses de fotões em campos mistos num reactor, é a sua reduzida sensibilidade a neutrões com energias inferiores a 4 MeV [OSV96]. A sensibilidade a neutrões térmicos dos dosímetros D-2 é de 3,4 mGy/10¹⁰ n/cm² [FER03]. A partir de 7 MeV, existe um aumento rápido na sensibilidade relativa a neutrões devido ao decaimento do ²⁴Na produzido na reacção ²⁷Al(n,α)²⁴Na. Esta característica foi já aplicada na dosimetria de neutrões rápidos em aceleradores [RAN83]. No presente trabalho pretende-se explorar as propriedades dosimétricas deste material TL com vista à sua aplicação em reactores nucleares.

É de ter em conta que o Al₂O₃:Mg,Y é sensível à radiação ultravioleta, o que obriga a protegê-los da luz. Esta susceptibilidade pode ser explorada, p.ex., na dosimetria de acidentes nucleares [OSV90].

Estudos sobre a regeneração térmica do material revelaram que aquecimentos em vácuo e arrefecimentos rápidos reduzem a sua sensibilidade [OSV96], assim, é aconselhável um tratamento térmico de 1 h a 600 °C, na presença de oxigénio, seguido de um arrefecimento lento no próprio forno [FER03]. Uma vez acondicionados em suportes cerâmicos, a regeneração térmica dos dosímetros foi feita no forno Termolyne Type 48000 Furnace disponível no RPI. Esta regeneração térmica é sempre repetida antes de uma irradiação.

A avaliação do sinal TL foi feita com o leitor Harshaw 3500, disponível no Laboratório de Termoluminescência do RPI - Figura 2.11. Este leitor tem um sistema de aquecimento até 600 °C. O perfil de aquecimento é definido em termos de taxa de aquecimento e de temperatura, tempos de pré-aquecimento e regeneração térmica no próprio leitor. Os dosímetros de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ foram avaliados a uma taxa de aquecimento de $5\text{ }^\circ\text{C s}^{-1}$ e a curva de brilho foi integrada entre os 100 °C e os 300 °C [FER03].

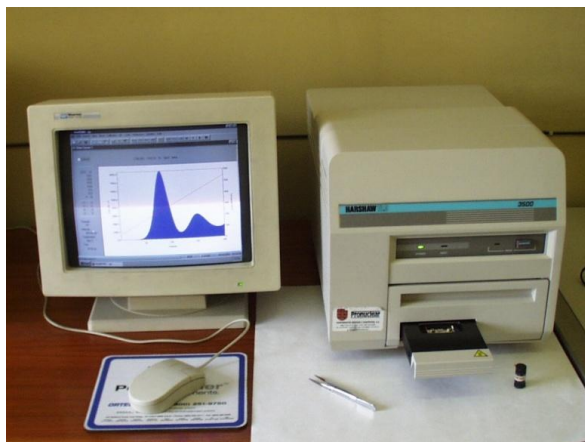


Figura 2.11. Leitor Harshaw 3500.

O aquecimento dos dosímetros é feito através do contacto destes com um suporte metálico existente no porta-amostras do leitor e a luz emitida é captada por um fotomultiplicador sensível a uma larga gama de comprimentos de onda. Associado ao fotomultiplicador encontra-se um filtro óptico que absorve a radiação com comprimentos de onda indesejados, em especial, na zona do infravermelho. O sinal medido é enviado por um sistema electrónico para um computador, informação essa que pode ser a curva de brilho ou a luz integrada entre duas temperaturas ou

tempos pré-definidos. A leitura decorre numa atmosfera inerte de azoto, pelo que existe uma tubagem adequada e um sistema de controlo do débito de gás (400 ml/min).

O desvanecimento térmico dos $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ é inferior a 10% em 72 h (armazenando os dosímetros no escuro), no entanto o pico a 400 °C tem um desvanecimento térmico de aproximadamente 30% para as mesmas condições. A reprodutibilidade destes dosímetros em campos mistos apresenta um desvio de aproximadamente 3% [FER03].

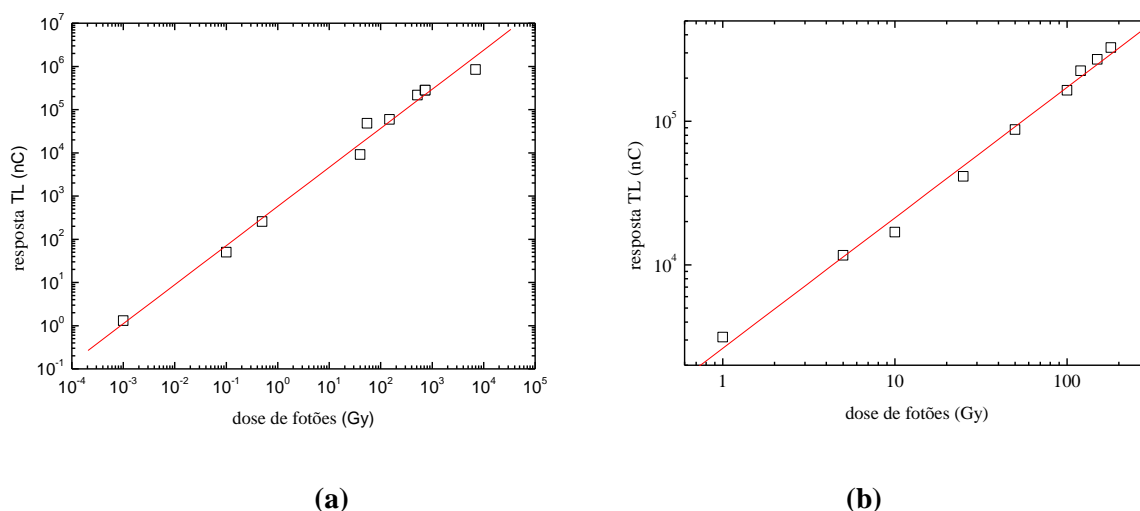
Quando justificado, os dosímetros foram previamente limpos com algodão embebido em álcool de forma a remover qualquer sujidade que o dosímetro pudesse ter, proveniente, p.ex., do contacto directo com o utilizador, e cuja combustão no acto de leitura pudesse interferir com a medida. Cada dosímetro foi identificado com um número impresso a grafite na face contrária à que é exposta quer à fonte de radiação, quer ao fotomultiplicador. Os dosímetros foram manuseados com pinças metálicas, evitando tocar-lhes na face que fica exposta. Todos os dosímetros foram cuidadosamente pesados numa balança de precisão.

As variações de sensibilidade existentes dentro de um grupo de dosímetros do mesmo tipo, devido à não homogeneidade do grupo (desvio padrão de cerca de 10%), exigem uma calibração individual [FER03]. A calibração foi feita na fonte de ^{60}Co de maior débito do LMRIR para doses de 2 Gy e 50 Gy (tipo D-3 e o D-2 respectivamente) e na fonte de ^{60}Co da UTR para uma dose de 6 kGy apenas para o tipo D-2. Os dosímetros foram avaliados com o leitor Harshaw 3500 e o fundo foi corrigido fazendo duas leituras seguidas dos dosímetros e subtraindo a segunda à primeira.

A resposta do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ em função da dose de fótons foi estudada mediante irradiações nas fontes de ^{60}Co com doses entre 100 mGy e 10 kGy para o tipo D-2 e entre 1Gy e 10^2 Gy para o tipo D-3. Nestas irradiações, os dosímetros foram acondicionados no suporte em perspex opaco da Figura 2.4. Fez-se uma irradiação de 100 mGy numa das fontes de ^{60}Co do LMRIR num campo com 18 cm de diâmetro, sob um débito de dose de $\sim 0,02$ mGy/min a 2 m da fonte.

Para a gama de doses dos 100 mGy até ao 1 kGy utilizou-se a outra fonte de maior débito do LMRIR, expondo os dosímetros a um campo transversal homogêneo de dimensões 20x20cm, com um débito de dose de aproximadamente 199,90 mGy/min a 1 m da fonte. Acima deste valor utilizou-se o irradiador da UTR fixando a placa perspex numa grelha junto ao núcleo, onde o débito de dose era de ~13 kGy/h. As irradiações na UTR foram monitorizadas com dosímetros calibrados de Amber perspex da Harwell Technologies.

Na Figura 2.12. observa-se a região de linearidade do pico a 250 °C para os dois tipos de dosímetros. Os dosímetros D-2 têm uma larga região de linearidade entre os 100 mGy e os 10 kGy - Figura 2.12. (a). Os dosímetros D-3 apresentam uma boa linearidade entre 1 Gy e 10² Gy, podendo estender-se o estudo da resposta TL a doses mais baixas - Figura 2.12. (b).



**Figura 2.12. Resposta dos dosímetros TL em função da dose de fotões (pico a ~250 °C).
(a) D-2 e (b) D-3.**

A utilização do óxido de alumínio como um detector de activação requer a determinação da sua composição elementar. Para esse efeito, fizeram-se análises por INNA e PIXE ao Al₂O₃:Mg,Y, o que permitiu determinar a concentração de Al no detector.

As experiências de INAA foram realizadas no sistema pneumático fixo do RPI considerando a reacção de captura no ^{27}Al , $\sigma_0 = 0,231 \text{ b}$, e medindo a actividade do ^{28}Al com o sistema HPGe – Figura 2.7. A quantidade de alumínio foi confirmada usando como referência discos de alumínio. As irradiações no sistema pneumático decorreram a 1 MW durante 10 a 20 s sob um fluxo de neutrões térmicos da ordem dos $3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{s}$.

Com as análises de PIXE realizadas aos dosímetros D-2, pelo grupo do Doutor Miguel Reis do departamento da Física (ITN), foi possível determinar a concentração de alumínio presente, assim como identificar e quantificar impurezas existentes em pequenas concentrações.

Os resultados são apresentados na Tabela 2.2 em % mássica e o erro em % do valor indicado é explicitado entre parêntesis. Pela técnica de INAA estimou-se 53,5% de alumínio presente no detector o que está de acordo com o valor determinado por PIXE.

Tabela 2.2 - Resultados de PIXE

Al	53,5 (5%)
Y	0.38 (5%)
Ca	0.02 (5%)
Fe	0.01 (11%)
Zn	0.004 (25%)
Ga	0.006 (17%)
Cr	< 0.002

Na determinação dos fluxos de neutrões com o $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ como um detector de activação, utilizou-se o valor apresentado na tabela para o alumínio.

2.2.4 – Detectores de perspex vermelho

Os detectores de perspex vermelho utilizados foram fornecidos pela Harwell Technologies, são desenvolvidos essencialmente para medidas de doses elevadas de fotões em aplicações industriais

[ISO95], são maquinados em rectângulos de 30 x 11 mm com espessuras de 3 ± 0.55 mm de folhas de Red 4034 perspex e selados em sacos individuais de polyester/aluminium foil/polyethylene laminado, a referência ao lote é marcado no saco – Figura 2.13. Cada lote de dosímetros é calibrado num irradiador de ^{60}Co e os valores da calibração são fornecidos juntamente com os dosímetros. No entanto, o lote de dosímetros adquiridos deve ser calibrado nas condições de irradiação do experimentador utilizando os seus próprios instrumentos.



**Figura 2.13. Dosímetros Red 4034 da Harwell (lote JB):
dosímetro (direita) e saco de protecção (esquerda).**

Há vários factores que afectam a resposta e a estabilidade durante e após a irradiação do PMMA, sendo os principais: a concentração de água no dosímetro, a taxa de dose de fotões a que são expostos, a temperatura durante a irradiação e o tempo de espera (tempo entre o fim da irradiação e a leitura do dosímetro) [BAR90, BIR96 e WHI01].

O perspex é higroscópico podendo absorver até 2 % por peso (2 %w/w) de água se exposto a um ambiente húmido. A absorvância específica diminui rapidamente com o aumento de água na gama dos 0,1 aos 0,4 %w/w. Alguns estudos revelaram que dos 0,4 aos 0,6 %w/w, a absorvância específica diminui aproximadamente 2%, sendo na região dos 0,6 aos 1 %w/w praticamente independente da concentração de água. Acima dos 1,0 %w/w observaram-se pequenos aumentos na absorvância específica. Sendo assim, a concentração de água atingida no fim da produção do dosímetro deve ser superior a 4 %w/w [BAR90]. O empacotamento do detector protege-o contra danos da superfície, que poderiam diminuir a exactidão das medidas da absorvância e preservam o nível de concentração de água alcançado durante a produção do dosímetro.

A resposta dos dosímetros é praticamente independente da temperatura, durante a irradiação, até aos 40 °C, tendo o cuidado de fazer as leituras pouco tempo após a irradiação. Pode assim, usar-se como referência uma calibração efectuada a 20 ou 25 °C [WHI01]. A sensibilidade à temperatura aumenta, dependendo do lote [WHI01], de 1% a 3% para temperaturas entre os 25 e os 43 °C e 4% a 9% até aos 60 °C [BAR90]. Acima dos 60 °C a sensibilidade do material aumenta rapidamente chegando ao valor máximo aos 80 °C e finalmente diminui com a aproximação à temperatura de fusão do PMMA.

O desvanecimento térmico do perspex depende da concentração de água no dosímetro, da dose acumulada, da taxa de dose a que o detector esteve exposto e do comprimento de onda da medição [BET02]. Temperaturas acima dos 40 °C após a irradiação afectam a absorvância específica em $\pm 3\%$ a $\pm 12\%$, dependendo do lote e da taxa de dose a que os dosímetros são sujeitos [WHI01]. Quando os dosímetros são armazenados à temperatura ambiente (15 - 25 °C) a absorvância específica diminui 2% em 10 dias [WHI85]. Sendo assim, se os dosímetros forem armazenados bem selados e à temperatura ambiente, e, a irradiação tiver ocorrido a taxas de dose acima dos 15 kGy/h, pode ser preferível medir os dosímetros após um intervalo mais longo do que os habituais dois dias recomendados, dando tempo para a estabilização da resposta dos dosímetros [FER05].

A influência da dose sente-se para taxas de dose abaixo dos 5,4 kGy/h e especialmente se combinadas com temperaturas elevadas [WHI85]. A taxas de dose acima dos 5,4 kGy/h e temperaturas entre os 20 e 40 °C conseguem-se medidas com uma exactidão de 2% em campos puros de fotões [GLO93 e FER05].

Os dosímetros Red 4034 perspex (lote JB) utilizados neste trabalho foram calibrados numa posição em frente ao irradiador de ^{60}Co da UTR (Figura 2.5) com um débito de dose de 4,069 kGy/h. A relação entre a dose absorvida pelos dosímetros e a absorvância específica é obtida irradiando conjuntos de 3 dosímetros a diferentes níveis de dose, entre os 5 e os 50 kGy, em intervalos de dose inferiores ou iguais a 5 kGy. A utilização simultânea de 3 dosímetros em cada irradiação permite obter uma média representativa da dose absorvida pelo conjunto.

Os dosímetros foram analisados com um espectrofotómetro, modelo Shimadzu UV mini-1240, sendo a absorvância lida a 640 nm e a espessura de cada dosímetro medida com um micrómetro, dial gauge da Mitutoyo, devidamente calibrado, com uma precisão de 0,01 mm - Figura 2.14. Este equipamento pertence à UTR no campus do ITN.



Figura 2.14. (a) Espectrofotómetro Shimadzu UV mini-1240 e (b) micrómetro da Mitutoyo (UTR).

A Figura 2.15 mostra a absorvância específica a 640 nm em função da dose de fotões e compara a curva de calibração fornecida pela Harwell com a obtida no processo de calibração efectuado na UTR. Para obter as curvas de calibração e compará-las entre si, aos pontos experimentais ajustaram-se polinómios (cujo grau foi escolhido de modo a que o teste do chi-quadrado fosse mínimo).

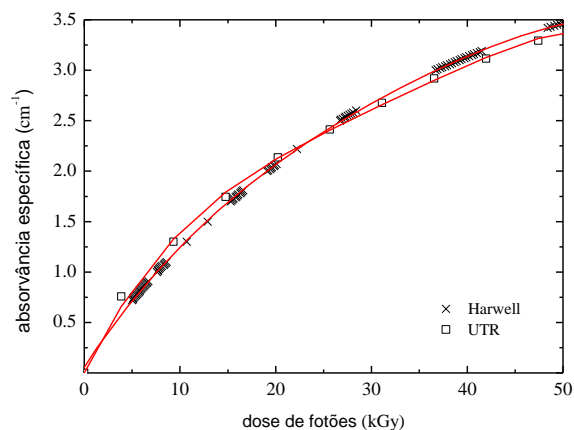


Figura 2.15. Absorvância específica versus dose de fotões.

A curva de calibração da UTR apresenta um desvio máximo da ordem dos 10% em relação à curva do fornecedor confirmando a importância de se fazer uma calibração com os instrumentos de medida usados.

O desvanecimento térmico dos dosímetros Red 4034 irradiados no RPI foi estudado para diferentes doses de fótons durante um período de 22 dias. Após a leitura de cada dosímetro estes foram selados novamente nos sacos de origem. Os resultados obtidos estão sumarizados na Tabela 2.3. Verificou-se que o desvanecimento térmico é praticamente insignificante nos primeiros dias após a irradiação e, nesta experiência, é mais importante a doses elevadas.

Tabela 2.3 - Desvanecimento térmico do Red 4034 irradiado no RPI com diferentes valores de dose

Dose de fótons (kGy)	Tempo de espera (dias)					
	1-2	7	8	12	14	22
+ 50		95,5%	94,8%	95,5%	95,5%	----
48.1		95,5%	95,5%	95,5%	95,5%	----
23.0	100%	100%	100%	95,5%	95,5%	95,5%
11.0		100%	100%	100%	95,5%	95,5%
6.0		100%	100%	100%	95,5%	95,5%

Nas determinações efectuadas utilizou-se um tempo de espera de 2 dias, o que representou um compromisso entre a necessidade de uma estabilização da resposta dos detectores e de uma obtenção rápida de resultados.

2.3 – Medição da potência no RPI

O fluxo de neutrões no RPI é controlado por um conjunto de equipamentos que cobre todas as condições de operação possíveis desde o arranque até à potência máxima, bem como a paragem do reactor em condições de segurança. O fluxo de neutrões no reactor é proporcional ao número de cisões que ocorrem por unidade de tempo e, por consequência, é proporcional à potência

térmica desenvolvida. O controlo da potência é feito mediante o posicionamento no núcleo de 5 barras de comando: 4 barras de segurança e uma de regulação [MEN97].

Neste momento existem três sistemas de controlo distintos quanto ao tipo de informação obtida para controlar o reactor: três canais neutrónicos dando informação de natureza neutrónica; um canal térmico que permite determinar a potência do reactor através do conhecimento preciso do caudal e do aumento da temperatura da água do sistema primário de refrigeração ao atravessar o núcleo [MEN97]; e o canal ^{16}N que consiste na medição da actividade de ^{16}N da água do sistema primário de refrigeração com uma câmara de ionização pressurizada [IAE97]. Pode ainda ser utilizada a câmara de ionização CRGA11 (Figura 2.8).

A escolha do sistema a utilizar na medição da potência durante uma irradiação depende da ordem de grandeza da potência.

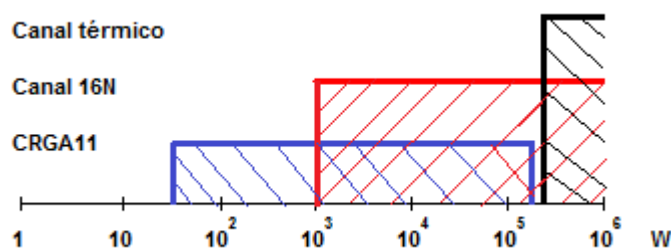


Figura 2.16. Gama de utilização dos sistemas de controlo na medição da potência do RPI.

Os canais neutrónicos abrangem toda a gama de potência, mas a potência indicada pelos canais neutrónicos varia cerca de 10% durante a semana, para as mesmas condições. Isto deve-se às alterações de perfil do fluxo de neutrões causadas pelos movimentos das barras de comando para compensar o ciclo semanal de ^{135}Xe . Como consequência é necessário obter informação “fina” sobre a potência por outros meios.

2.3.1 – Canais neutrónicos

Os canais neutrónicos incluem detectores de neutrões (câmaras de ionização e de cisão) que permitem recolher informações relativas à potência e a sua evolução no tempo.

- Canal de arranque: é o único canal que dá informação na fase de arranque do reactor (estado subcrítico) devido ao baixo fluxo neutrónico existente, a detecção é feita por uma câmara de cisão;
- Canais Log-Lin: dão indicação da potência desde alguns watts até à potência nominal de 1 MW, dão o ritmo de evolução da potência através do período do reactor (intervalo de tempo em que a potência aumenta de um factor $e (=2,718)$ [MAR77]) e fornecem os sinais lógicos relativos ao período e à potência, aos sistemas de segurança [MEN97]. Utiliza como detectores câmaras de ionização compensadas.
- Canal linear e de comando automático: fornece a indicação linear da potência desde alguns watts até à potência nominal em várias gamas, permitindo efectuar o comando automático da potência, após a estabilização do nível de potência no valor pretendido.

2.3.2 – Canal Térmico

Este sistema é constituído por um conjunto de termopares (cromel-alumel) ligados em modo diferencial à saída da água do sistema primário da casa das bombas e à entrada de água no núcleo do reactor, gerando uma força electromotriz proporcional ao diferencial de temperatura da água que atravessa o núcleo. O sinal fornecido pelos termopares é amplificado e dá indicação da temperatura da água do sistema primário através de um registador em °C [MEN97]. A medição do caudal é feita recorrendo a uma flange com um disco perfurado montada na conduta de retorno do sistema primário na casa das bombas. O estrangulamento introduzido produz uma diferença de pressão entre os dois lados do disco, proporcional à velocidade de passagem da água [RAM02].

Os sistemas de medição do caudal e do aumento de temperatura da água do sistema primário ao atravessar o núcleo ΔT foram devidamente calibrados [RAM02], permitindo determinar com exactidão a potência térmica do reactor. Utilizando os valores da calibração determinou-se que para uma potência de 1 MW o valor ΔT medido na sala de comando deverá ser $3,86 \pm 5\%$ °C [RAM02].

Este sistema de medição da potência é utilizável, na prática, apenas para potências superiores a 300 kW. Além disso, o seu tempo de resposta é longo, da ordem de alguns minutos. O ajuste fino de potência do RPI é sempre feito manualmente pelos operadores. Numa irradiação típica, o potenciómetro de “power demand” é colocado num valor próximo de 1 MW (mas ligeiramente inferior), procedendo-se depois a pequenos ajustes manuais até que o canal térmico indique o valor correspondente a 1 MW.

Em irradiações para dosimetria foi estabelecido que o ajuste final da potência apenas é feito depois da irradiação terminar. O quociente entre os valores inicial e final do potenciómetro de “power demand” dá directamente um factor de correcção de potência (mencionado no capítulo 1.2). Deste modo tem-se um controlo efectivo da potência a que foi feita a irradiação.

A utilização do canal ^{16}N , descrito na secção seguinte, permite ainda um melhor controlo.

2.3.3 – Canal ^{16}N

O canal ^{16}N é constituído por uma câmara de ionização pressurizada, LND 50316 (resposta nominal: $1,2 \times 10^{-9}$ A/R/h para kerma no ar de Co-60) instalada na casa das bombas junto ao sistema primário de refrigeração, que detecta sobretudo o decaimento do ^{16}N resultante da activação do oxigénio (reacção: $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$) da água após passagem pelo núcleo. O sinal da câmara é medido por um electrómetro da Keithley Instruments modelo 6514 (M6514).

A relação entre o canal ^{16}N e o canal térmico foi estudada através de um conjunto de medidas obtidas durante a subida gradual da potência até 1 MW [MAR08]. Da linearidade da resposta (nA vs °C) foi possível determinar o valor da câmara correspondente a 1 MW que é $0,540 \text{ nA} \pm 5\%$ [MAR08].

Este sistema é insensível aos efeitos das perturbações locais do fluxo de neutrões, da posição das barras de cádmio e das experiências que estejam a decorrer. O estudo da linearidade da resposta do sistema em função da potência de operação do reactor mostrou que este é indicado para a

monitorizar entre 10 a 1000 kW [MAR08]. Este sistema de monitorização revelou desvios entre a potência real e o seu valor nominal [MAR08], justificando a monitorização da potência sempre que seja necessário escalonar os resultados para a potência máxima ou comparar resultados obtidos em diferentes irradiações. Verificou-se que as variações de potência (no início, fim e durante a irradiação) são reflectidas pelo sinal da câmara, sugerindo a necessidade de integrá-lo no tempo para determinar a potência média da irradiação.

2.3.4 – Instalação do sistema de registo contínuo do sinal do canal ^{16}N

De forma a normalizar as condições de irradiação ao valor nominal da potência, instalou-se um sistema que permite registar continuamente o sinal da câmara de ionização que mede o decaimento do ^{16}N da água após passagem pelo núcleo.

O processo em geral consiste na conversão do sinal analógico do electrómetro M6514 para digital, na sua leitura com correcção de escala e em seguida a transmissão desta leitura através da rede ethernet, permitindo registar continuamente a resposta do canal ^{16}N e aceder aos valores de qualquer terminal com ligação à mesma rede. A transmissão da leitura é feita por um MicroServer industrial da OMEGA (iServer EIS-2B) que converte a interface RS-232 do M6514 para Ethernet por TCP/IP [OMEGA]. O iServer tem uma tensão de entrada de 12 VDC sendo alimentado por uma fonte de alimentação SL2.100 da PULS [PUL06].

Utilizando o Microsoft Visual Studio 2008 desenvolveu-se um programa para Windows (32bit) em VB.NET que controla o M6514 através da porta série virtual utilizando linguagem SCPI (Standard Commands for Programmable Instruments) [SCP99 e KEI03], lendo e gravando em ficheiros os valores de forma contínua e totalmente autónoma. Mesmo que ocorra um corte na ligação/alimentação ou perante qualquer outra anomalia, assim que a energia é retomada o programa recupera autonomamente [SAN11]. Este registo contínuo é feito por um servidor do Centro de Informática do ITN (CI-ITN), garantindo um serviço contínuo 24 h por dia.

3 – DOSIMETRIA DO FEIXE DE NEUTRÕES RÁPIDOS

As irradiações no tubo E4 foram feitas introduzindo suportes de alumínio como o da Figura 3.1, posicionando os detectores desde o início do tubo embebido na parede, até à cavidade exterior de experimentação (Figura 2.3), permitindo assim, estudar o campo de radiação ao longo de aproximadamente 140 cm do eixo do feixe. Sendo que, os 0 cm correspondem ao ponto mais perto do núcleo, até aos 100 cm é a zona do tubo embebido na parede e dos 100 aos 140 cm é a cavidade externa. Para avaliar a atenuação do feixe ao longo do tubo ajustou-se à curva experimental obtida, a seguinte expressão [LAM66]:

$$I_a = I_0 e^{-\mu x} \quad (3.1)$$

sendo μ o coeficiente linear de atenuação, ou seja, a probabilidade de colisão por cm, I_a a intensidade do feixe após atravessar o meio atenuador e I_0 a intensidade do feixe no início do tubo. Estas experiências realizaram-se com o núcleo na configuração N2-P1/8, Figura 2.1. (a).

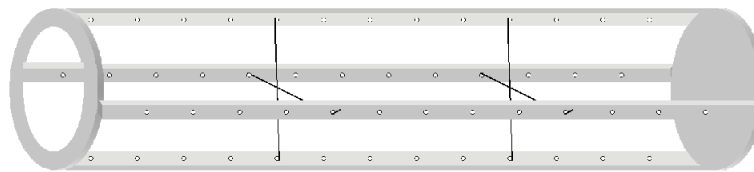


Figura 3.1. Suporte em Al para irradiações no tubo E4.

3.1 – Dosimetria de neutrões com detectores de activação

As componentes térmica e epitérmica do campo de radiação no tubo E4 foram caracterizadas colocando 22 detectores de ouro (\varnothing 2 mm), alternadamente com e sem caixas de cádmio de 1

mm, ao longo do feixe e irradiando à potência de 1 MW durante 2h. Os fluxos de neutrões térmicos e epitérmicos, ϕ , ao longo do tubo E4, determinados com base nas medidas de actividade dos detectores de ouro, apresentam-se na Figura 3.2. Estimou-se uma incerteza de 10% na obtenção dos fluxos térmicos e 9% nos epitérmicos. O factor de autoprotecção epitérmico F_{epi} (9%), aplicado devido à utilização de detectores de ouro puro em vez de uma liga, é o que mais contribui para este erro.

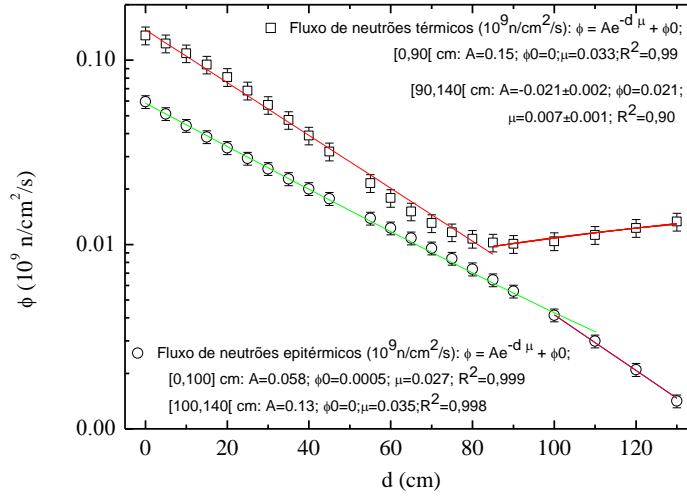


Figura 3.2. Perfil de neutrões térmicos e epitérmicos ao longo do feixe rápido do RPI.

($d = 0$ corresponde ao início do tubo, ou seja, à posição mais próxima do núcleo).

O fluxo de neutrões térmicos varia entre $1,4 \times 10^8$ n/cm²/s e $1,1 \times 10^7$ n/cm²/s desde o início do tubo até cerca de 80 cm de percurso. Entre os 73 e os 100 cm (zona revestida a Pb, Figura 2.3) há uma ligeira diminuição na atenuação dos neutrões, verificando-se um aumento do fluxo de neutrões térmicos para distâncias superiores a $d = 100$ cm, isto é, fora do tubo, mas dentro da cavidade de irradiação externa (Figura 2.3). Este aumento está associado a retrodispersão de neutrões pelas paredes da cavidade de experimentação. Vê-se também que o fluxo de neutrões epitérmicos diminui de $5,9 \times 10^7$ n/cm²/s para $1,4 \times 10^6$ n/cm²/s, sendo a atenuação de neutrões epitérmicos mais acentuada na cavidade exterior de irradiação, o que por sua vez contribui para o aumento de neutrões térmicos.

O perfil do fluxo equivalente de cisão ao longo do feixe foi determinado com 15 detectores de níquel em caixas de cádmio, para evitar a queima do núcleo alvo, distribuídos ao longo do feixe e irradiados a 1 MW durante 10 h. Para verificar a semelhança entre o espectro de neutrões rápidos e o espectro de cisão irradiaram-se detectores de níquel, índio e alumínio dentro de caixas de cádmio com 1 mm de espessura, separados por papel de alumínio para evitar contaminações, em três posições do eixo do feixe. Os fluxos de neutrões com energia superior a 1 MeV, $\phi_{E>1\text{MeV}}$, foram determinados recorrendo ao programa BETA [MOL82] desenvolvido no RPI. Este programa utiliza as razões de índices de espectro obtidos com estes detectores, para ajustar um espectro de entrada e calcular o fluxo de neutrões com energias superiores a 1 MeV.

Os fluxos equivalentes de cisão, ϕ_c , obtidos com os detectores de alumínio, níquel e índio nas três posições do feixe, estão na Tabela 3.1. Na Tabela 3.1, estão também representados os fluxos de neutrões com energias superiores a 1 MeV, obtidos com o auxílio do programa BETA, tomando em conta as três medidas, em cada ponto.

**Tabela 3.1 - Fluxo equivalente de cisão em três posições do tubo E4
e fluxo de neutrões rápidos ($E > 1$ MeV)**

	d = 5 cm	d = 45 cm	d = 85 cm
$\phi_c (^{27}\text{Al}) (10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	1,36	0,67	0,51
$\phi_c (^{58}\text{Ni}) (10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	1,05	0,55	0,34
$\phi_c (^{115}\text{In}) (10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	1,05	0,46	0,30
$\phi_{E>1\text{MeV}} (10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1})$	0,79	0,36	0,23

Os valores mostram um pequeno desvio entre os fluxos equivalente de cisão obtidos para os diferentes detectores, sendo $\phi_c (^{115}\text{In}) \leq \phi_c (^{58}\text{Ni}) \leq \phi_c (^{27}\text{Al})$, o fluxo equivalente de cisão aumenta para as reacções com maior energia de limiar. Num outro trabalho demonstrou-se que o espectro muda ligeiramente ao longo do tubo E4, onde a situação é diferente do que se observa na piscina do RPI [MAR11]. No capítulo 5 é feito o estudo do campo de neutrões entre placas de combustível, ou seja, junto à fonte de neutrões antes de serem atenuados, e observa-se o inverso $\phi_c (^{115}\text{In}) \geq \phi_c (^{58}\text{Ni}) \geq \phi_c (^{27}\text{Al})$ e com um desvio relativamente menor.

Os resultados da Tabela 3.1 mostram que a razão entre os equivalentes de cisão para um detector de níquel e os fluxos de neutrões acima de 1 MeV é 1.3, não se registando uma variação apreciável ao longo do feixe, em acordo com resultados anteriores [GON77]. Sendo assim, é habitual caracterizar o campo de neutrões rápidos no tubo E4 pelo fluxo equivalente de cisão, obtido com detectores de Ni.

O perfil do fluxo de neutrões rápidos, obtido com detectores de Ni, está representado na Figura 3.3, as barras de erro correspondem a uma incerteza de 9%, valor estimado para as medidas obtidas com Ni, essencialmente devido à incerteza associada ao valor da semi-vida do produto da reacção, à secção eficaz de cisão e à eficiência do detector. Observa-se uma atenuação de $1,4 \times 10^9$ n/cm²/s para $2,1 \times 10^8$ n/cm²/s ao longo dos 140 cm da zona de irradiação.

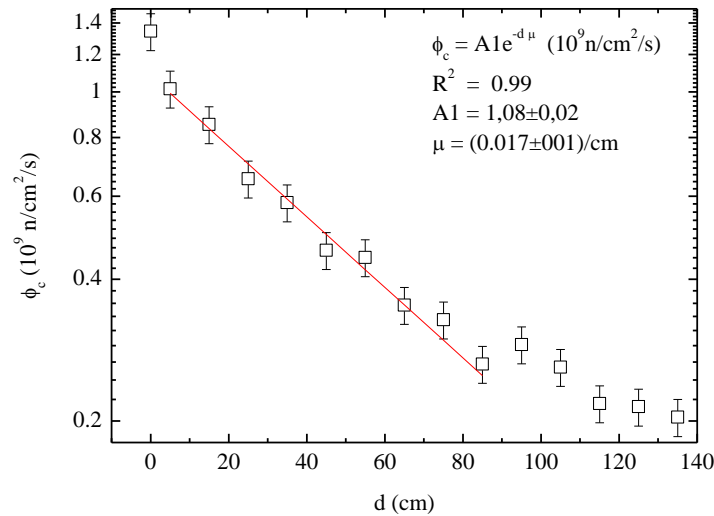


Figura 3.3. Perfil de neutrões rápidos ao longo do feixe de neutrões rápidos do RPI.

O valor do primeiro ponto está mais elevado em relação aos seguintes porque nesta posição, posição, $d = 0$ cm, junto ao filtro de neutrões térmicos e gamas (Figura 2.3), os neutrões vêm de um meio dispersor diferente. Dentro do tubo $]0, 80]$ cm observa-se uma atenuação de $1,0 \times 10^9$ n/cm²/s para $2,7 \times 10^8$ n/cm²/s. Entre os 80 e os 100 cm nota-se o efeito da blindagem de Pb e da passagem do tubo embebido na parede para a cavidade de irradiação, nesta a atenuação é menor.

3.2 – Dosimetria de fótons com a câmara de ionização

Na determinação da taxa de dose de fótons no tubo E4 posicionou-se a câmara de ionização, CRGA11, ao longo do eixo central do suporte em alumínio da Figura 3.1, cobrindo 15 cm do eixo a aproximadamente 60 cm da face do tubo mais próxima do núcleo. As irradiações realizaram-se à potência de 1 MW e os resultados obtidos indicaram nesse ponto uma taxa de dose de fótons de 29,12 Gy/h. O erro associado à determinação das doses de radiação gama está compreendido entre 5 e 6%, tendo em conta o erro de leitura do picoamperímetro (2 - 3%) e o erro inerente à calibração da câmara.

3.3 – Dosimetria de neutrões rápidos e fótons com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$

Para a caracterização do campo misto no tubo E4 com dosímetros TL, foram utilizadas as estruturas de alumínio da Figura 3.1, onde se colocaram 20 dosímetros TL de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, envolvidos em folhas de polietileno preto e opaco. Em algumas posições das estruturas incluíram-se detectores de alumínio e níquel como referência. As irradiações foram feitas a 1 MW durante 10 h sob um fluxo de neutrões rápidos da ordem de $10^9 \text{ n/cm}^2/\text{s}$. As experiências de irradiação no feixe de neutrões rápidos e subseqüentes medições foram repetidas seis vezes, de forma a permitir estimar a incerteza-padrão das medidas.

A dose de fótons foi determinada pela primeira leitura TL após a irradiação, enquanto a componente de neutrões rápidos foi avaliada por medição da actividade recorrendo ao sistema de detecção que inclui o detector de HPGe – Figura 2.7. As medições da actividade tiveram início pelo menos 1 h depois da irradiação, permitindo o decaimento de possíveis produtos de reacção de curta semi-vida (tais como as reacções $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ e $^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$). Uma determinação adicional da componente de neutrões rápidos foi obtida por avaliação do sinal TL auto-induzido, acumulado durante pelo menos 30 h de armazenamento (duas semi-vidas do ^{24}Na) após a regeneração térmica. Durante o armazenamento os dosímetros foram mantidos em folhas de polietileno preto e opaco num local com reduzida radiação de fundo.

Na Figura 3.4 está representado o perfil da dose de fótons no tubo E4 do RPI, obtido com os dosímetros TL de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ do tipo D-2. Estas medidas da dose de fótons estão de acordo com as realizadas com a câmara de ionização, com um desvio de $\pm 15\%$. Estimou-se uma incerteza de 5% nas medidas obtidas com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$.

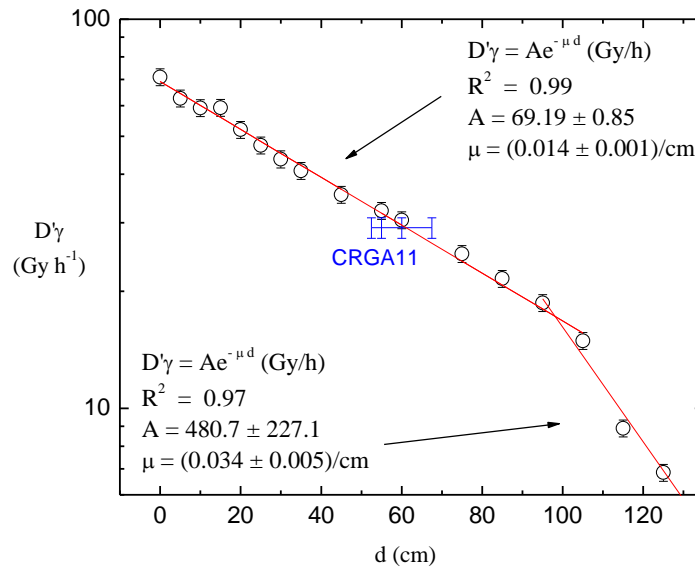


Figura 3.4. Distribuição axial do débito de dose de fótons, D'_γ , no tubo E4.

Mais uma vez, nota-se o efeito da passagem do tubo para a cavidade exterior de irradiação. Os diferentes declives mostram que o débito de dose é essencialmente determinado pela cavidade e materiais envolventes e não pelo ar que constitui o meio que atenuaria a radiação tanto dentro do tubo como dentro da cavidade de irradiação.

O perfil do fluxo de neutrões rápidos ($> 7\text{MeV}$), ϕ_c , obtido pela activação do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$, em comparação com o obtido com detectores de activação de alumínio, está representado na Figura 3.5. O acordo entre os resultados obtidos com os detectores de alumínio e os dosímetros de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ é superior a 94%.

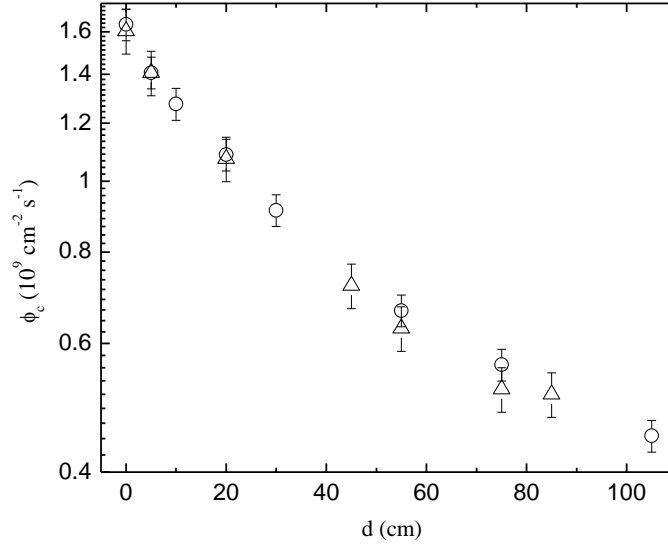


Figura 3.5. Fluxo de neutrões rápidos ($> 7\text{MeV}$) no feixe de neutrões rápidos do RPI, obtida com folhas de alumínio e dosímetros de óxido de alumínio: (Δ - Al e O - $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$). As barras de erro correspondem às incertezas: 5% com $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ e 7% com Al.

A intensidade do campo de radiação ao longo do feixe decresce com o afastamento ao núcleo. A uma potência de 1 MW, o débito de dose de fótons decresce de 70 Gy h^{-1} para 6 Gy h^{-1} e o fluxo de neutrões rápidos ($> 7\text{MeV}$) decresce de $2 \times 10^9 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ para $4 \times 10^8 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ (Figuras 3.4 e 3.5).

Para determinar a componente de neutrões rápidos a partir do sinal TL auto-induzido, foi necessário utilizar os dosímetros TL do tipo D-3, os quais, por serem mais sensíveis permitem detectar a reduzida dose auto-induzida. O sinal medido está directamente relacionado com a fluência de neutrões com energias superiores a 7 MeV. A resposta TL auto-induzida, em função da fluência de neutrões rápidos, ϕ , está representada na Figura 3.6.

A partir do ajuste linear entre estes dois parâmetros, pode concluir-se que a razão entre a dose de fótons auto-induzida, D_γ , e a fluência de neutrões rápidos é $3,3 \times 10^{-10} \mu\text{Gy cm}^{-2}$ e o limite de detecção, ou seja, a menor fluência de neutrões detectável por este método é $1,4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. A

este valor corresponde um dosímetro TL com aproximadamente 75 mg de Al. Este valor foi estimado pela percentagem mássica de Al determinada por INAA e pela pesagem dos TL numa balança de precisão.

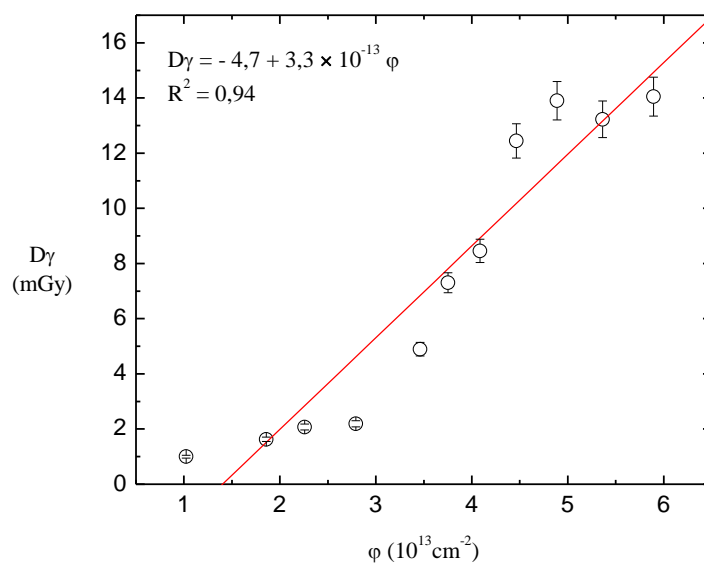


Figura 3.6. Sinal TL auto-induzido em função da fluência de neutrões rápidos.

4.1 – Dosimetria de neutrões com detectores de activação

Devido à alteração da configuração do núcleo do RPI foi necessário proceder à medição dos fluxos de neutrões térmicos, epitérmicos e rápidos nas posições mais frequentemente utilizadas. O procedimento experimental foi o usual para as três configurações consideradas neste trabalho: irradiação de monitores de ouro para medir os fluxos de neutrões térmicos e epitérmicos; e, irradiação de monitores de índio, níquel e alumínio para medir os fluxos de neutrões rápidos com energias acima de 1 MeV, pelo método dos índices de espectro.

Usaram-se ligas de alumínio com 0,1 % de ouro, em vez de ouro puro, para evitar o efeito de perturbação de campo, tal como discutido anteriormente.

As irradiações foram efectuadas em posições livres da grelha, cobrindo uma linha perpendicular ao núcleo, desde a posição 44 à 48, e paralelamente ao núcleo desde a posição 26 à 56. As condições de irradiação constam da Tabela 4.1.

Tabela 4.1. Condições de irradiação na grelha do núcleo

Dispositivo Irrad.	$\phi_{\text{ter}}/\phi_{\text{epiter}}$	$\phi_{\text{rap.}}$
DI44	15 min / 1MW	1h40min / 100kW
DI45	30 min / 1MW	45 min / 1 MW
DI46	6h / 1MW	4h / 1MW
DI47	Max / 1 MW	Max / 1 MW
DI48	Max / 1 MW	Max / 1 MW
DI56	6h / 1MW	4h / 1MW
DI36	5h / 1MW	4h / 1MW
DI26	5h / 1MW	4h / 1MW

As componentes térmica e epitérmica do campo de radiação foram caracterizadas colocando 10 monitores de ouro-alumínio, alternadamente sem e com caixas de cádmio de 1 mm, nas régua da Figura 4.1. Os monitores ficam a uma distância de 5 cm entre si, para evitar a interferência do cádmio nos monitores irradiados sem cádmio. A interpolação dos valores medidos permite obter

as actividades correspondentes a monitores sem e com cádmio, para as dez posições utilizadas e portanto os perfis verticais dos fluxos de neutrões térmicos e epitérmicos.

Os valores de fluxos térmicos e epitérmicos são a média dos valores obtidos para as posições 5,6 e 7 da régua de suporte, Figura 4.1, que correspondem à zona do plano a meia altura dos elementos de combustível à qual corresponde o valor máximo de fluxo.

A caracterização da componente rápida foi feita colocando os detectores de índio, níquel e alumínio juntos numa caixa de cádmio de 1 mm de espessura, em três posições da estrutura cilíndrica em polietileno da Figura 4.1. Uma caixa na zona central, correspondendo ao plano a meia altura dos elementos de combustível, e outras duas à distância de 7,5 cm desta no mesmo eixo vertical, sendo feita a média dos valores obtidos nas três posições de irradiação. Os fluxos de neutrões com energia superior a 1 MeV, foram determinados recorrendo ao programa BETA.

Os monitores de ouro-alumínio foram medidos com o detector NaI(Tl) e todos os outros foram medidos com o detector HPGe, Figura 2.7. Alguns dos resultados obtidos para o campo de radiação nas configurações estudadas serão confrontados com outros obtidos ao longo do trabalho.

4.2 – Dosimetria de fótons com câmaras de ionização

As taxas de dose de fótons determinaram-se no plano a meia altura dos elementos de combustível, posição que corresponde ao seu valor máximo na vertical utilizando a estrutura da Figura 2.8 na posição 4.

Todas as medições foram efectuadas a 100 kW, para as três configurações consideradas neste trabalho e os procedimentos foram iguais para as três. Mediram-se várias posições da grelha, numa linha perpendicular e numa paralela ao núcleo, num só dia para evitar as variações temporais do fluxo. Os valores foram extrapolados para 1 MW, utilizando o factor de correcção da potência, k , e, apresentam-se na Figura 4.2. Estimou-se um erro padrão relativo abaixo de 6%.

Configuração N2-P1/8 (k = 1,00)				DI TaxaDose E6Gy/h
	44 1,93			
55 0,87	45 1,03	35 1,03	25 0,81	
56 0,39	46 0,46	36 0,46	26 0,40	
	47 0,23	37 0,23		
	48 0,12			
	49 0,07			

Configuração N2-P1/8a (k = 1,06)			
	44 1,91		
	45 1,07		
56 0,37	46 0,44	36 0,44	26 0,34
	47 0,21		
	48 0,11		
	49 0,06		

Configuração N2-P1/9 (k = 1,00)			
	44 2,24		
	45 1,09		
56 0,40	46 0,48		
	47 0,23		
	48 0,12		
	49		

Figura 4.2. Taxas de dose de fótons em três configurações do núcleo do RPI.

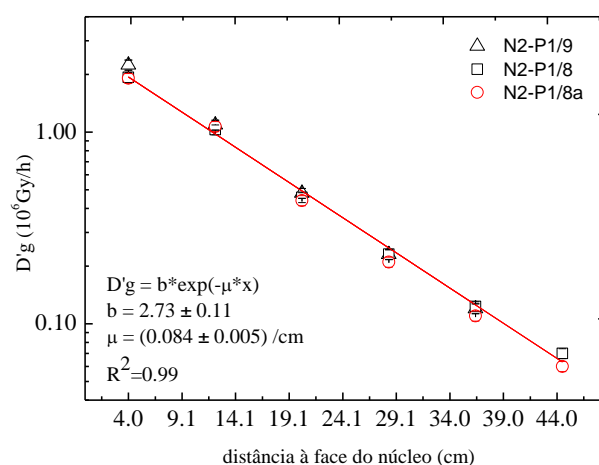


Figura 4.3. Atenuação da taxa de dose gama, $D'g$, da posição 44 à 49 (correspondendo a 40,5 – 445,5 mm da face do núcleo)

Ajustou-se aos pontos experimentais a expressão da atenuação da intensidade (3.1). Da Figura 4.3, verifica-se que os resultados são consistentes entre as diferentes configurações. O valor na posição 44 da configuração N2-P1/9 é mais elevado em relação às outras configurações o que pode estar associado ao efeito do reflector de Be, bloco quádruplo colocado nesta configuração, Figura 2.1, mas, seria de esperar o mesmo efeito na posição 45 e seguintes.

O coeficiente de atenuação da radiação gama na água ($\mu = 0,084 \pm 0,005$ /cm) determinado pela expressão ajustada aos pontos experimentais, é referente a uma dada energia efectiva do espectro de radiação gama, cujo valor pode ser obtido recorrendo a tabelas com os coeficientes de atenuação da radiação na água para diferentes energias da radiação gama. Obteve-se para a energia efectiva do espectro de radiação gama o valor $0,75 \pm 0,06$ MeV [NIST4].

4.3 – Dosimetria de neutrões rápidos e de fotões com o $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$

Irradiaram-se dosímetros de $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ tipo D-2 em posições livres da grelha do núcleo (configuração N2-P1/8 da Figura 2.1. (a)) a baixa potência (10 - 100 kW) de forma a manter uma taxa de dose de fotões da ordem dos 10^4 Gy/h e um fluxo de neutrões rápidos entre 10^9 - 10^{11} n/cm²/s, cobrindo todo o comprimento e largura da grelha do núcleo. As irradiações foram efectuadas desde a posição 44 à 48 (as posições caracterizadas experimentalmente estão em **negrito/italico** na Figura 2.1. (a)) o que corresponde a uma distância de 40,5 mm a 364,5 mm da face do núcleo.

A sensibilidade do $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ a neutrões térmicos é 1% mais baixa que a resposta a fotões o que torna os dosímetros D-2 e os D-3 adequados para dosimetria de fotões sem necessidade de recorrer a um absorvedor de neutrões térmicos [FER03, OSV93].

Utilizaram-se os suportes cilíndricos da Figura 4.1, colocando os dosímetros D-2 em três posições abrangendo 7,5 cm acima e 7,5 cm abaixo do plano a meia altura do elemento de combustível. Em cada posição de medida colocaram-se 2 dosímetros D-2 e um disco de alumínio

para controlar as condições experimentais. O valor da dose de fótons é determinado pela média da resposta dos seis dosímetros TL colocados a meio dos elementos de combustível. Os dosímetros TL foram irradiados e armazenados em folhas de polietileno pretas para os proteger da luz. Seguindo a metodologia proposta, a dose de fótons foi determinada pela primeira leitura TL após a irradiação, enquanto a componente de neutrões rápidos foi avaliada medindo a actividade do dosímetro uma hora após a irradiação e avaliando o sinal TL auto-induzido após 30 h de armazenamento.

Os cálculos da activação foram efectuados considerando 53,5% de Al presente no $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ com uma incerteza de $\pm 5\%$. A Tabela 4.2 sumariza os resultados, extrapolados para 1 MW, obtidos com os dosímetros D-2, a câmara de ionização CRGA11 e os discos de alumínio. A Figura 4.4 mostra a variação do campo de radiação em função da distância ao núcleo.

Tabela 4.2 – Taxa de dose de fótons e fluxo de neutrões rápidos na grelha do núcleo a 1MW

Posições de irradiação da grelha do núcleo	Taxa de dose de fótons (10^5 Gy/h)			Desvio(%)	Fluxo de neutrões rápidos (10^{11} n/cm ² /s)			Desvio(%)
	D-2	CRGA11			D-2	Al		
44	21.92	19.30		11.9	74.64	74.56		0.1
45	8.55	10.30		20.5	27.16	27.67		1.9
46	4.48 $\pm 5\%$	4.56 $\pm 6\%$		1.8	7.02 8%	6.84 7%		2.6
47	2.23	2.31		3.6	2.26	2.17		4.0
48	1.10	1.23		11.8	0.73	0.72		1.4

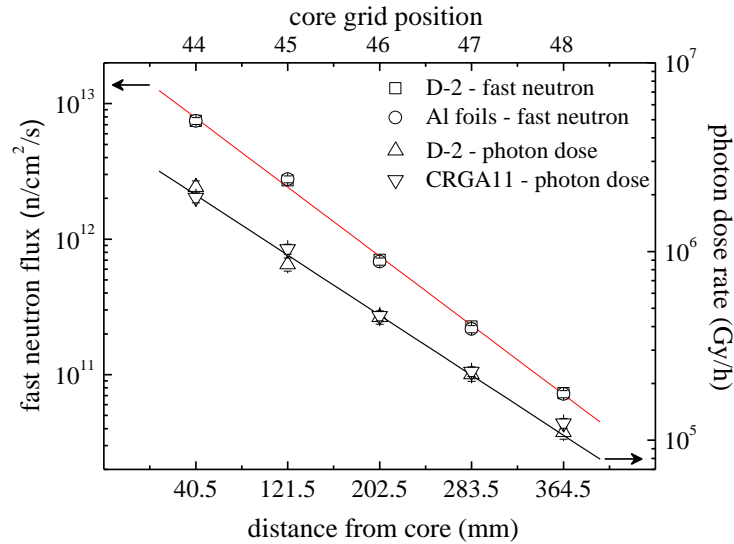


Figura 4.4. Atenuação de nêutrons rápidos e dose de fótons da posição 44 à posição 48 (correspondendo a 40.5 - 364.5 mm da face do núcleo).

A dose de fótons obtida com dosímetros D-2 e com a câmara de ionização apresentam um bom acordo com um desvio máximo de 20%, mas, a maioria das medidas têm um desvio abaixo dos 12%. Há duas contribuições principais para o valor da incerteza nas medidas: 5% da monitorização da potência e 2,5% da posição do detector. Comparando os resultados obtidos com discos de Al e com os dosímetros D-2 observa-se um desvio de 4%, abaixo do valor estimado para a incerteza das medidas de actividade.

O acordo entre a presente metodologia e os métodos convencionais para determinar a componente de nêutrons rápidos é de 95%, e, na determinação de doses de fótons em campos mistos melhor que 88%, desde que se sigam os processos de calibração adequados.

A resposta TL auto-induzida em função da fluência de nêutrons está na Figura 4.5.

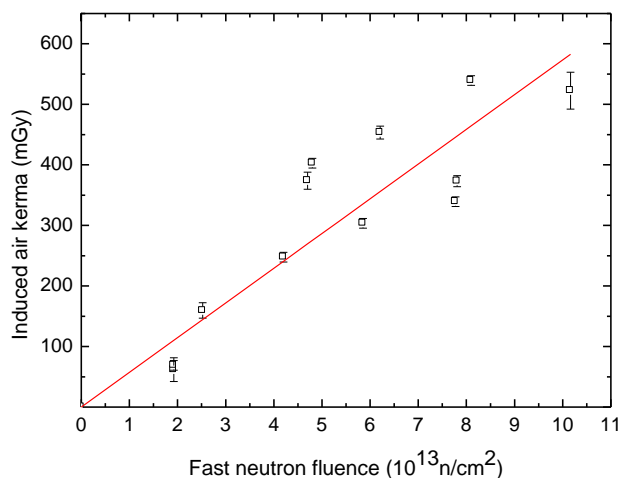


Figura 4.5. Sinal TL auto-induzido em função da fluência de neutrões rápidos.

A razão entre a dose de fótons auto-induzida e a fluência de neutrões rápidos, estimada como o declive do ajuste linear dos dados, é $5,7 \times 10^{-12} \text{ mGy} \cdot \text{cm}^2$. O método desenvolvido tem um limite de detecção da ordem dos $2 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2$, correspondendo a uma resposta TL induzida de 1 mGy. O limite superior de detecção estimado é $2 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$, o que corresponde ao valor da dose de fótons a que normalmente os dosímetros D-2 saturam (10 kGy). No entanto, junto ao núcleo do RPI, a fluência de neutrões rápidos não deve ultrapassar os $1,4 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2$ para evitar danificar os dosímetros D-2 com doses de fótons acima dos 10 kGy, que corresponde a cerca de 750 mGy de dose induzida para a posição mais perto do núcleo (posição 44).

4.4 – Dosimetria de fótons com dosímetros de perspex vermelho da Harwell

As experiências com o Red 4034 perspex da Harwell Technologies (lote JB) realizaram-se, na piscina do reactor, nas posições 47 e 48 da grelha do núcleo (configuração N2-P1/9 Figura 2.1 (c)). As irradiações efectuaram-se à potência de 100 kW de forma a manter uma taxa de dose de fótons de 10^4 Gy/h e um fluxo de neutrões térmicos entre $1,8 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ a $1,1 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{s}$. A temperatura no local das irradiações foi de 40°C e a distância entre centros das duas posições de irradiação é de 81,0 mm, estando a posição mais próxima do núcleo a 283,5 mm da face deste.

Os dosímetros foram irradiados e mantidos selados nos sacos de origem até ao momento da leitura para os proteger da humidade. As leituras dos dosímetros efectuaram-se dentro de dois dias após a irradiação.

Os dosímetros foram posicionados nas régulas em polietileno da Figura 4.1 cobrindo cerca de 15 cm do centro do plano a meia altura do elemento de combustível. Um detector de activação de alumínio foi colocado por trás do Red 4034 posicionado a meia altura do elemento de combustível como referência às condições de irradiação. O valor da dose absorvida é obtido pela média das três medidas feitas com o Red 4034.

Com os resultados obtidos nas posições 47 e 48 traçaram-se as rectas dose de fotões versus tempo de irradiação, Figura 4.6. Verifica-se uma linearidade na resposta até cerca dos 50 kGy, com tendência a saturar acima deste valor. A este valor de dose corresponde uma fluência de neutrões térmicos da ordem dos 3×10^{14} n/cm² e de rápidos da ordem dos 3×10^{13} n/cm² para a posição 48 e uma fluência de neutrões térmicos da ordem dos 1×10^{15} n/cm² e de rápidos da ordem dos 3×10^{14} n/cm² para a posição 47. Com estes resultados obtiveram-se os seguintes valores de taxa de dose de fotões para as posições 47 e 48: 21,43 kGy/h e 10,98 kGy/h respectivamente.

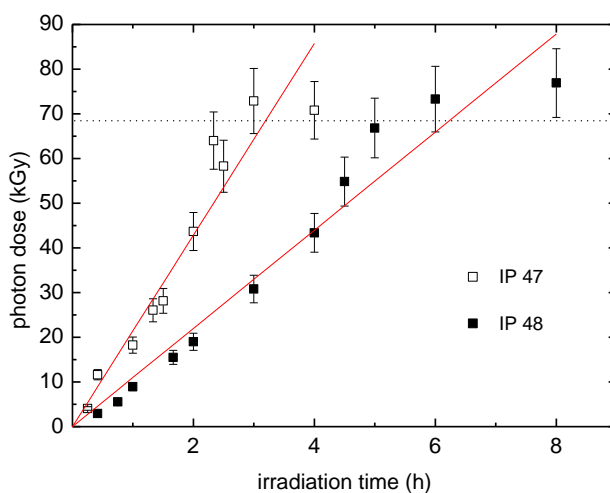


Figura 4.6. Dose de fotões em duas posições da grelha do núcleo (PI47 e PI48: posição de irradiação a 283,5 mm e 364,5 mm da face do núcleo respectivamente) para diferentes tempos de irradiação. As barras de erro correspondem a uma incerteza de 10%. A linha a tracejado indica o patamar de saturação com a dose de fotões.

Estimou-se uma incerteza de 10% para as medidas realizadas com o Red 4034, tendo em conta o valor da incerteza fornecido pela Harwell associado à medida da absorção de dose pelo Red 4034, a incerteza associada à análise espectrométrica da resposta dos dosímetros e à medida da espessura dos dosímetros (reprodutibilidade dos instrumentos), a qualidade da função de ajuste aos dados da calibração e a incerteza associada às condições de irradiação (reprodutibilidade das experiências).

Estudou-se a reprodutibilidade da resposta do Red 4034 na posição 48 à potência de 100 kW, em irradiações de 2h e em dias diferentes. As experiências mostraram uma reprodutibilidade com um desvio da ordem dos 7%. Estas medidas incluem já a incerteza associada à potência do reactor.

É de referir, que as irradiações foram preferencialmente realizadas à 2ª feira, de maneira que cada irradiação correspondesse praticamente ao mesmo estado do núcleo do RPI no respeitante ao ciclo do ^{135}Xe . Nem sempre se conseguiu a 2ª feira para realizar as irradiações mas utilizou-se sempre o factor de correcção da potência.

A fim de confirmar a validade da técnica determinaram-se as doses de radiação gama nestas mesmas posições da grelha, na presente configuração do núcleo, e sob as mesmas condições experimentais, utilizando as técnicas atrás descritas, isto é: utilizando detectores de óxido de alumínio D-2 e a câmara de ionização CRGA 11. Os resultados obtidos constam da Tabela 4.3 e a Figura 4.7 mostra a variação do campo de radiações desde 283,5 mm até 364,5 mm da face do núcleo.

Observa-se um bom acordo da ordem dos 90% entre os três métodos, tendo em conta a incerteza das medidas este acordo pode descer aos 70% o que é suficiente para a maioria das aplicações num reactor nuclear. Pelo gráfico observa-se que a taxa de fotões obtida com Red 4034 em experiências de campos mistos tende a ser subestimada.

Tabela 4.3. Taxa de dose de fótons obtida com três métodos diferentes em posições da grelha a 100 kW

Posições de irradiação da grelha	Taxa de dose de fótons (kGy/h)		
	Red (640nm)	D-2	CRGA 11
47	21,43±2,14	22,98±0,93	22,81±1,28
48	10,98±1,10	11,20±0,45	12,11±0,68

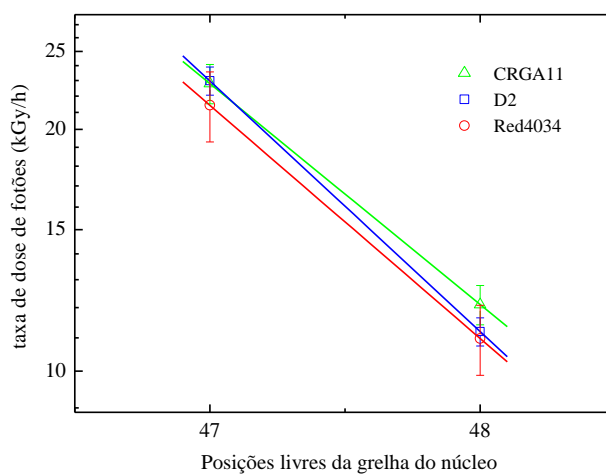


Figura 4.7. Atenuação de fótons da posição 47 para a posição 48 da grelha do núcleo.

5 – DOSIMETRIA NO NÚCLEO N3-P1/1

Após a conversão do combustível do reactor para urânio de baixo enriquecimento, procedeu-se à determinação dos fluxos de neutrões em posições da grelha e entre placas de combustível do novo núcleo N3-P1/1 [FER08]. Abordamos aqui apenas as medidas entre placas de combustível dada a sua complexidade e ligação com os métodos de monitorização da potência.

Os canais de água entre placas de combustível têm uma espessura de 3.05 mm, pelo que foi necessário fazer suportes específicos para as irradiações. Os suportes são em acrílico, Figura 5.1. (b), e a parte superior do suporte é em alumínio para ajudar a estabilizar e a posicionar o suporte entre placas. Estas réguas permitem uma boa reprodutibilidade de posicionamento entre as diferentes irradiações. Os detectores foram fixados com fita adesiva ao longo de todo o comprimento do elemento de combustível, de forma a cobrir a zona do máximo de fluxo. Os suportes foram colocados no interior dos elementos de combustível no 5º canal de água, no sentido Oeste-Este entre placas de combustível Figura 5.1. (a).

As experiências foram realizadas a baixa potência, dado que as placas de acrílico bloqueiam um canal de refrigeração do combustível, tendo sido necessário monitorizar a potência durante as irradiações para fazer o escalonamento dos valores obtidos para 1 MW. Durante as irradiações entre placas de combustível manteve-se a câmara CRGA11 na posição 55 da grelha do núcleo, na linha média do combustível. A seguir às irradiações entre placas de combustível, foi possível subir a potência do reactor até à zona de intercepção onde são aplicáveis os dois métodos, CRGA11 e canal ^{16}N , Figura 2.16, e através de uma sequência de irradiações a diferentes potências, monitorizadas pelo valor do canal ^{16}N , (subcapítulo 2.3.3 [MAR08]), verificou-se a resposta da câmara CRGA11 determinando-se o valor $50,34 \mu\text{A} \pm 6\%$ correspondente a 1 MW. Com este valor é possível relacionar os valores da câmara obtidos a baixa potência durante as irradiações entre placas de combustível com o correspondente a 1 MW, e assim fazer o escalonamento dos valores de fluxo obtidos a baixa potência para 1 MW.

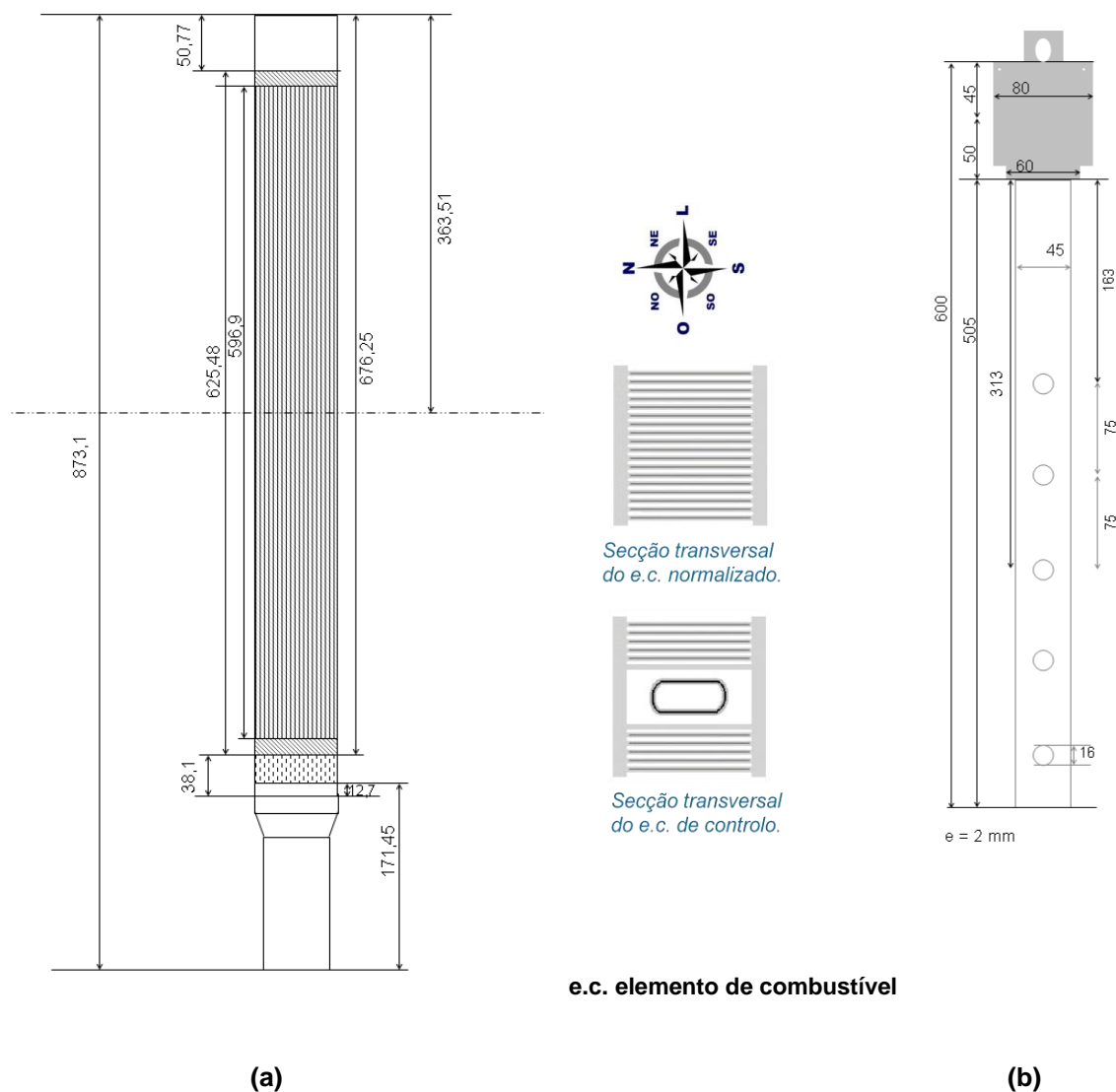


Figura 5.1. (a) Elemento de combustível standard. (b) Suporte em acrílico para irradiação entre placas de combustível. As dimensões estão em mm.

Os fluxos de neutrões foram determinados como é habitual, pelo método da activação com neutrões. Irradiaram-se separadamente detectores de ouro puro nus e sob cádmio durante 1 h a uma potência nominal de 100 W, de modo a calcular a componente térmica e epitérmica, e, detectores de níquel, índio e alumínio juntos entre discos de cádmio, durante 3 h a 1 kW, para através do método dos índices de espectro determinar os fluxos de neutrões acima de 1 MW. O ouro foi medido com o detector NaI(Tl) e os restantes com o HPGe.

5.1 – Fluxos de neutrões no núcleo N3-P1/1

As distribuições verticais dos fluxos de neutrões para a potência de 1 MW para cada posição estudada estão representadas graficamente para neutrões rápidos, térmicos e epitérmicos, na Figura 5.2 e 5.3. Fazendo um ajuste polinomial (de grau 3, menor χ^2) ao perfil dos fluxos determina-se o máximo do fluxo de neutrões e integrando a curva no plano a meia altura (entre -5 e 5 cm) obtém-se o valor médio do fluxo nessa região. Os fluxos de neutrões a meia altura do combustível a 1 MW estão na Tabela 5.1. O máximo do fluxo ocorre entre 5 a 10 cm abaixo do plano a meia altura do combustível e é cerca de 10% superior ao valor médio - Figura 5.2 e 5.3. Este tipo de perfil assimétrico em relação ao plano a meia-altura do núcleo já era esperado, dado que as barras de comando estão sempre parcialmente inseridas, a partir do topo do núcleo, pelo que a zona não coberta pelas barras tem maior intensidade.

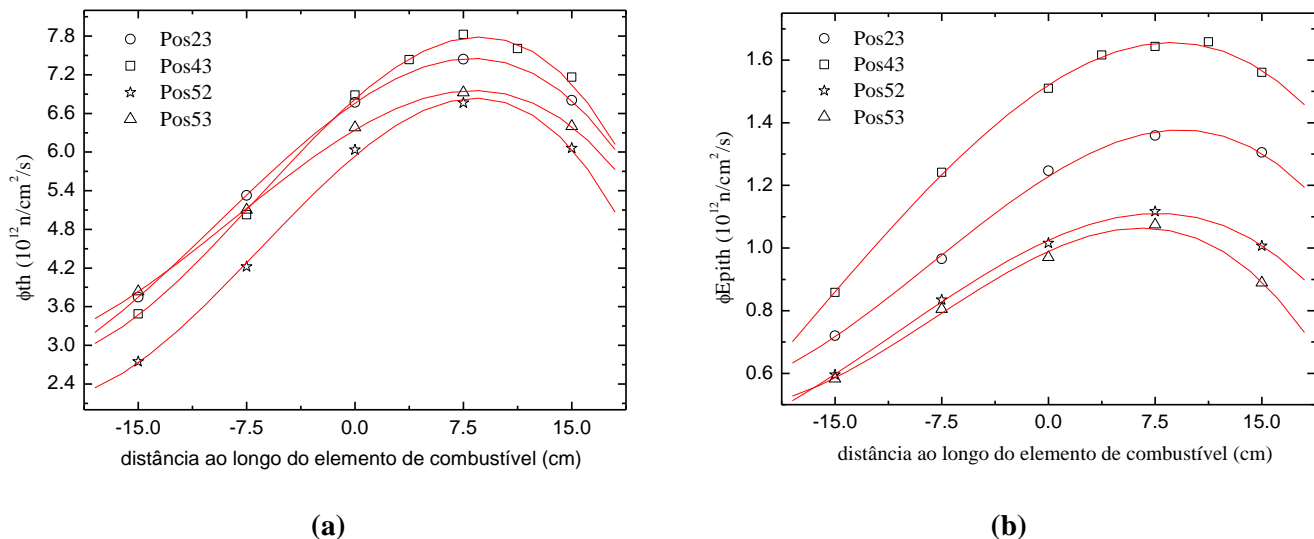


Figura 5.2. Perfil vertical do fluxo de neutrões entre placas de combustível. (a) neutrões térmicos (b) neutrões epitérmicos. A posição 0,0 cm corresponde à meia altura do elemento de combustível, a cota positiva à zona mais profunda e a negativa ao topo do elemento.

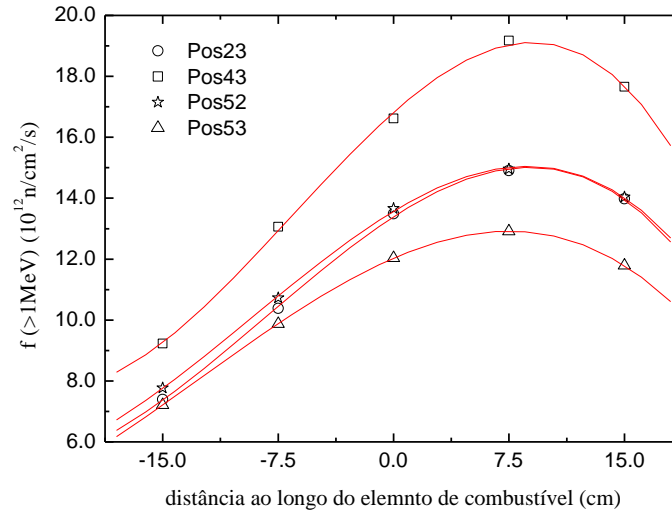


Figura 5.3. Perfil vertical do fluxo de nêutrons acima de 1 MeV entre placas de combustível.

Tabela 5.1 – Fluxos de nêutrons a meia altura do combustível

Nêutrons térmicos e epitérmicos entre placas de combustível						
Posição	$P_{nominal}$ (kW)	$\frac{P_{real}}{P_{nominal}}$	ϕ_0 (cm ⁻² s ⁻¹)	ϕ_{epith} (cm ⁻² s ⁻¹)	Z_{max} (cm)	$\frac{\phi_{0,max}}{\phi_0}$
23	0,1	1,04 ¹ 1,02	6,8×10 ¹²	1,3×10 ¹²	8	1,10
43	0,1	1,06 1,05	6,9×10 ¹²	1,5×10 ¹²	9	1,15
52	0,1	1,03 1,03	6,1×10 ¹²	1,1×10 ¹²	9	1,13
53	0,1	1,02 1,00	6,4×10 ¹²	1,0×10 ¹²	8	1,10
Nêutrons rápidos entre placas de combustível						
Posição	$P_{nominal}$ (kW)	$\frac{P_{real}}{P_{nominal}}$	ϕ_c (cm ⁻² s ⁻¹)			ϕ_{1MeV} (cm ⁻² s ⁻¹)
			Al	Ni	In	
23	1	1,11	1,9×10 ¹³	1,9×10 ¹³	2,1×10 ¹³	1,4×10 ¹³
43	1	1,11	2,3×10 ¹³	2,4×10 ¹³	2,6×10 ¹³	1,7×10 ¹³
52	1	1,11	1,9×10 ¹³	2,0×10 ¹³	2,1×10 ¹³	1,4×10 ¹³
53	1	1,11	1,7×10 ¹³	1,7×10 ¹³	1,8×10 ¹³	1,2×10 ¹³

¹ O 1º valor corresponde à irradiação de Au sem cádmio e o segundo valor à irradiação de Au sob cádmio.

A incerteza na determinação dos valores da actividade de saturação está associada: a 7% de incerteza na potência de irradiação; ao posicionamento dos detectores, com base nos valores medidos, o gradiente da intensidade do campo de neutrões com a distância ao núcleo é da ordem de $-10\%/cm$. Considerando uma incerteza no posicionamento de 3 mm existirá uma incerteza de 2% para o valor medido no centro de cada posição; $\sim 2,5\%$ relativa à eficiência de detecção na medição da actividade; e, 1 % na incerteza no ajuste polinomial.

Da lei da propagação dos erros resulta um erro relativo da ordem dos 8% na obtenção das actividades de saturação, no entanto, os fluxos de neutrões epitérmicos têm uma incerteza acrescida devido ao factor de autoprotecção epitérmico F_{epi} (9%) por se ter usado ouro puro em vez de uma liga (capítulo 1.3) o que resulta um valor final de 12% para o fluxo epitérmico e 14% para o fluxo térmico [FER08].

6 - CONCLUSÕES

As metodologias apresentadas neste trabalho foram aplicadas a campos de radiação com diferentes características, designadamente, no núcleo do reactor, na grelha do núcleo e no feixe de neutrões rápidos do RPI. Para cada situação foi necessário fazer um plano da irradiação: detectores a utilizar, determinar o tempo de irradiação e a potência de irradiação. Em alguns casos foi necessário adaptar os suportes para posicionar os detectores nos locais de irradiação. Além disso foi necessário efectuar a medição da potência para cada irradiação de forma a controlar as condições experimentais e assim poder comparar irradiações efectuadas em dias diferentes e a potências diferentes. Conforme as características do campo de radiação pode ser necessário utilizar um método de monitorização diferente.

Neste trabalho testaram-se duas metodologias experimentais na caracterização do campo misto de radiação em diferentes locais de irradiação do RPI. As metodologias apresentadas baseiam-se essencialmente na termoluminescência e na espectrofotometria, passando também pela activação de detectores com neutrões e pela utilização de uma câmara de ionização.

Os resultados desta investigação demonstraram que os dosímetros termoluminescentes de óxido de alumínio cerâmicos, $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$, são adequados para a determinação de doses de neutrões rápidos e fótons em campos mistos de radiação num reactor nuclear. As componentes de neutrões rápidos e de fótons podem ser determinadas separadamente com o mesmo dosímetro. A dose de fótons é determinada pela primeira medida termoluminescente, enquanto a segunda medida, após a regeneração térmica e o armazenamento, permite a detecção dos neutrões rápidos acima dos 7 MeV através do sinal termoluminescente induzido pelo decaimento do ^{24}Na .

Observou-se entre a metodologia apresentada e os métodos convencionais utilizados um acordo de 95% na determinação de neutrões rápidos e 88% na determinação de dose de fótons em campos mistos de radiação. Na determinação de doses de fótons em campos mistos com o

$\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ conseguem-se resultados com uma incerteza de 5%, desde que se sigam os processos de calibração adequados e optimizem as condições de irradiação.

A metodologia apresentada estende, assim, a aplicação dos dosímetros TL de $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ na detecção de neutrões rápidos ($> 7 \text{ MeV}$) no âmbito da dosimetria de reactores. Os resultados obtidos para a fluência acima dos 7 MeV podem ser convertidos para fluências de neutrões rápidos ($> 1 \text{ MeV}$) se o espectro de neutrões for bem conhecido, ou se, se combinarem com resultados obtidos com detectores de activação [GON95].

A utilização de dosímetros de perspex vermelho constitui, devido ao seu baixo custo, fácil aquisição comercial, simplicidade de manipulação e também devido à sua natureza, mais um processo eficaz na determinação de doses de radiação gama, estendendo a gama de detecção aos 50 kGy em campos mistos. Estimou-se uma incerteza de 10% nos resultados com os detectores de perspex vermelho na determinação de doses de fotões em campos mistos, esta incerteza pode ser reduzida fazendo uma calibração específica para cada lote de dosímetros, instrumentos utilizados e nas mesmas condições experimentais da irradiação. Pois verificou-se, que apesar dos detectores serem fornecidos com a própria curva de calibração, esta apresenta desvios em relação à curva obtida na calibração interna da UTR.

Os resultados destas metodologias demonstraram que estes materiais têm propriedades vantajosas que estendem a sua aplicação a campos mistos com taxas de doses de fotões até aos 10^4 Gy/h e fluências de neutrões rápidos da ordem dos $10^9\text{-}10^{11} \text{ n/cm}^2$, permitindo o posicionamento dos dosímetros perto dos materiais a irradiar. Experiências a 1 MW não podem ser monitorizadas em tempo real com estes dosímetros (D-2 e Red 4034), mas os resultados de uma caracterização das posições experimentais a baixa potência podem ser extrapolados com boa exactidão para as condições experimentais.

Para escalonar valores obtidos a baixa potência para 1 MW é necessária a medição exacta da potência a que as irradiações decorrem. Verificou-se que as irradiações são realizadas a potências diferentes da nominal, pelo que para se compararem resultados é necessário fazer um escalonamento das potências reais para o nominal 1 MW . Neste momento com o sistema de

registo contínuo do canal ^{16}N é possível comparar irradiações realizadas em dias diferentes e a potências diferentes do 1 MW nominal, calculando a potência média das irradiações, por integração no tempo dos valores convertidos para potência obtidos com o canal ^{16}N . Na medição da potência entre placas de combustível nenhum destes métodos é eficaz, mas o facto de se conseguir monitorizar a potência com exactidão com o canal ^{16}N , foi possível calibrar a câmara CRGA11 numa posição da grelha do núcleo, de modo a usá-la a baixa potência e fazer o escalonamento dos resultados para 1 MW com um erro associado de 7%.

Todos os resultados foram apresentados (comunicações em poster) em conferências internacionais e através destas o trabalho de investigação ficou documentado nas seguintes revistas internacionais:

(Santos, J.P.); Fernandes, A.C.; Gonçalves, I. C.; Marques, J.G.; Carvalho, A. F.; Santos, L.; Cardoso, J. and Osvay, M.: Photon and fast neutron dosimetry using aluminium oxide thermoluminescence dosimeters, Rad. Prot. Dosim. 120 No. 1–4 (2006) 358–360 (*14th International Conference on Solid State Dosimetry em New Haven, CT, EUA em Julho 2004*).

(Santos, J.P.); Marques, J.G., Fernandes, A.C. and Osvay, M.: Photon and fast neutron dosimetry using aluminium oxide thermoluminescence dosimeters in a pool-type research reactor, Nucl. Instrum. Methods A 580 (2007) 310-313 (*10th International Symposium on Radiation Physics, em Coimbra, Portugal em Setembro 2006*).

(Santos, J.P.) and Marques, J.G.: Photon dosimetry using Red 4034 Harwell dosimeters in a pool-type research reactor, Radiation Measurements 43 (2008) 1166-1169 (*15th International Conference on Solid State Dosimetry, em Delft, Holanda em Julho 2007*).

SIMBOLOGIA E NOTAÇÕES

AIEA, IAEA	Agência Internacional de Energia Atômica (Viena, Áustria), <i>International Atomic Energy Agency</i>
CHIP	Centro de Higienização por Ionização de Produtos
CPE	Equilíbrio de Partículas Carregadas (<i>Charged Particle Equilibrium</i>)
Curva TL	Curva de termoluminescência
D-2 e D-3	Dosímetros de $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Mg,Y}$ produzidos pelo IKI (sendo D-3 mais sensível que D-2)
FWHM	<i>Full Width at Half Maximum</i> (Largura a meia-altura)
HPGe	High Purity Germanium
IKI	<i>Institute of Isotopes and Surface Chemistry</i> (Hungria)
ITN	Intituto Tecnológico e Nuclear (Sacavém, Portugal)
IV	Infravermelho
LET	Linear energy transfer, transferência linear de energia
LMRIR	Laboratório de Metrologia das Radiações Ionizantes e Radioactividade
PMMA	Polimetilmetacrilato, polimetacrilato de metil
RPI	Reactor Português de Investigação
TL	Termoluminescencia ou termoluminescente
TLD	<i>Thermoluminescence Dosimetry</i> (Dosímetro termoluminescente)
UPSR	Unidade de Protecção e Segurança Radiológica
URSN	Unidade de Reactores e Segurança Nuclear
UTR	Unidade Tecnológica de Radioesterilização
UV	Ultravioleta

PUBLICAÇÕES E COMUNICAÇÕES NO ÂMBITO DA TESE

1. **(Santos, J.P.)** and Marques, J.G.: Photon dosimetry using Red 4034 Harwell doseimeters in a pool-type research reactor, *Radiation Measurements* 43 (2008) 1166-1169.
2. **(Santos, J.P.)**; Marques, J.G., Fernandes, A.C. and Osvay, M.: Photon and fast neutron dosimetry using aluminium oxide thermoluminescence doseimeters in a pool-type research reactor, *Nucl. Instrum. Methods A* 580 (2007) 310-313.
3. **(Santos, J.P.)**; Fernandes, A.C.; Gonçalves, I. C.; Marques, J.G.; Carvalho, A. F.; Santos, L.; Cardoso, J. and Osvay, M.: Photon and fast neutron dosimetry using aluminium oxide thermoluminescence doseimeters, *Rad. Prot. Dosim.* 120 No. 1-4 (2006) 358-360.

OUTRAS PUBLICAÇÕES NO CAMPO DE DOSIMETRIA DE REACTORES

1. Marques, J.G., Sousa, M., (Santos, J.P.), Fernandes, A.C.: Characterization of the fast neutron irradiation facility of the Portuguese Research Reactor after core conversion, *Applied Radiation and Isotopes* 69 (2011) 1128-1130.
2. Fernandes, A.C., (Santos, J.P.), Marques, J.G., Kling, A., Ramos, A.R., Barradas, N.P.: Validation of the Monte Carlo model supporting core conversion of the Portuguese Research Reactor (RPI) for neutron fluence rate determinations. *Ann. Nucl. Energy* 37 (2010) 1139-1145.
3. Dung, H.M., Freitas, M.C., (Santos, J.P.), Marques, J.G.: Re-characterization of irradiation facilities for k0-NAA at RPI after conversion to LEU fuel and re-arrangement of core configuration, *J. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 622 (2010) 438-442.
4. Fernandes, A.C.; Osvay, M.; (Santos, J.P.); Holovey, V.; Ignatovych, M.: TL properties of newly developed lithium tetraborate single crystals, *Radiation Measurements* 43 (2008) 476- 479.
5. Marques, J.G., Barradas, N.P., Kling, A., Ramos, A.R., (Santos, J.P.), Stevens, J.G. Matos, J.E., Commissioning of the new LEU core of the Portuguese Research Reactor, *Proc. 2008 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Hamburg Germany, March 2-5, (2008).
6. Fernandes, A. C.; (Santos, J. P.); Kling, A.; Marques, J. G.; Gonçalves, I. C.; Carvalho, A. F.; Santos, L.; Cardoso, J. and Osvay, M.: Thermoluminescence Dosimetry of a Thermal Neutron Field and Comparison with Monte Carlo Calculations, *Rad. Prot. Dosim.* 111 (2004) 35.

RELATÓRIOS INTERNOS

1. Ana Fernandes, **Joana Santos**, José Marques, Caracterização do campo de neutrões no núcleo do reactor português de investigação com combustível de baixo enriquecimento - Configuração N3-P1/1 (2008) ITN/RPI-R-08-102.

BIBLIOGRAFIA

- [BAA89] Baard, J. H., et al., 1989. *Nuclear data guide for reactor neutron metrology*. Kluwer Academic Press, Dordrecht.
- [BAR90] Barrett, J.H., et al., 1990. *High-dose intercomparison study involving red 4034 Perspex and radiochromic dye film*, UKAEA. AERE-R13159, Radiat. Phys. Chem. 36, 505-507.
- [BEL70] Bell, G., et al., 1970. *Nuclear reactor physics*. Van Nostrand Reinhold, New York.
- [BET02] Bett, R., et al., 2002. *The shelf life of polymethylmethacrylate dosimeters*, Radiat. Phys. Chem. 63, no. 3-6, 793-797.
- [BIR96] Biramontri, S., et al., 1996. *Effect of low irradiation temperature on the gamma-ray response of dyed and undyed PMMA dosimeters*. Radiat. Phys. Chem. 48, 105-109.
- [CRO85] Cross, W.G., 1985. *Neutron Spectroscopy, in: The dosimetry of ionizing radiation*. Academic press, London. Vol 2.
- [DIA07] Dias, M.I., et al., 2007. *Neutron activation analysis of archaeological materials: an overview of the ITN NAA laboratory*, Portugal. Archaeometry, 49, 381-391
- [FAI98] Fairand, B., 1998. *Calibration of a polymethylmethacrylate routine dosimetry system*. Radiat. Phys. Chem. 52, no. 1-6, 523-526.
- [FEL10] Felizardo, M., et al., 2010. *Superheated droplet detector response to fabrication variations*, Nucl. Instr. and Meth. A 614, 278-286.
- [FER08] Fernandes, A.C., et. al., 2008. *Caracterização do campo de neutrões no núcleo do reator português de investigação com combustível de baixo enriquecimento - Configuração N3-P1/1*. ITN/RPI-R-08-102.
- [FER03] Fernandes, A. C., 2003. *Dosimetria de campos mistos de radiação no Reator Português de Investigação: Simulação de Monte Carlo e dosimetria por termoluminescência*. Tese de Doutoramento em Física, FCUL.
- [FER04] Fernandes, A. C., et al., 2004. *Thermoluminescence dosimetry of a thermal neutron field and comparison with Monte Carlo calculations*. Radiat. Prot. Dosim. 111, no. 1, 35-39.

- [FER05] Fernandez Fernandez, A., et al., 2005. *Gamma dosimetry using red 4034 Harwell dosimeters in mixed gamma-neutron environments*. IEEE Trans. on Nuclear Science, 52, 505-509.
- [FRA05] Franco, F.J., et al., 2005. *Radiation tolerant D/A converters for the LHC cryogenic system*, Nucl. Instr. and Meth. A 553, 604-612.
- [GLO93] Glover, K.M., 1993. *A study of some parameters relevant to the response of Harwell PMMA dosimeters to gamma and electron irradiation*. Radiat. Phys. Chem. 42, n 4-6, 739-742.
- [GON77] Gonçalves, I.C., et al., 1977. *Determinação de fluxos de neutrões rápidos utilizando detectores de níquel*. LFEN-B-Nº22 URN.
- [GON82] Gonçalves, I.C., et al., 1982. *Determinação de espectros de neutrões rápidos pelo método dos índices de espectro*. LNETI/DEEN - nº 7.
- [GON95] Gonçalves, I.C., 1995. Atomkernerg.-Kernt. 46 (3) 12.
- [GRE81] Greening, J., 1981. *Fundamentals of radiation dosimetry*. Medical Physics Handbooks 6, Adam Hilger, Bristol.
- [HOR84] Horowitz, Y. S., 1984. *Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry in: Y.S. Horowitz (Ed.), Boca Raton, FL: CRC Press*.
- [IAE63] IAEA, 1963. *Neutron dosimetry. Proc. Symp. On neutron Detection, Dosimetry and Standardization*, harwell, UK, 10-14 Dec.1962, Viena.
- [IAE70] IAEA, 1970. *Neutron fluence measurements*. Technical Report Series 107, Viena.
- [IAE97] IAEA, 1997. *Research reactor instrumentation and control technology*. TECDOC-973, p. 71.
- [IAE03] IAEA, 2003. *Nuclear data section NDS-440*, Viena.
- [ISO95] ISO 11137:1995. *Sterilization of health care products - Requirements for validation and routine control - radiation sterilization*.
- [ISO96] ISO 4037-1:1996 *X and gamma reference radiation for calibrating dosemeters and dose rate meters and for determining the response as a function of photon energy*. International Organization for Standardization, Geneva.
- [ISO06] ISO/ASTM 51276, 2006. *Practice for use of a polymethylmethacrylate dosimetry system*. International standard ASTM.

- [KEI03] Keithley, 2003. *Model 6514 System Electrometer Instruction Manual*. Four Printing, U.S.A.
- [LAM66] Lamarsh, John R. 1966. *Introduction to nuclear reactor theory*. Addison-Wesley Publishing Company, Massachusetts, USA.
- [LOP86] Lopes, M.C., et al., 1986. *Parâmetros de neutrões térmicos e epitérmicos do RPI pelo método da activação de detectores*. LNETI/DEEN-B nº 91.
- [MAC69] Machado Jorge, H., 1969. *Formalismo de Westcott*. LFEN-NI 45 α .
- [MAR77] Martinho, E., 1977. *Medição de tempos de irradiação no RPI*, LFEN-URN NT 1/77.
- [MAR80] Martinho, E., et al., 1980. *Reactores nucleares de cisão o que são e como funcionam*. LNETI, Sacavém.
- [MAR91] Martinho, E., et al., 1991. *Campo de radiações do novo núcleo do reactor português de investigação*. LNETI/DEEN-R-91/21.
- [MAR95] Martinho, E., 1995. *Activação de amostras em reactores nucleares*, ITN, Dep. de Energia e Engenharia Nucleares, Portugal.
- [MAR02] Martinho, E., et al., 2002. *Cálculo do factor de autoprotecção neutrónica de grupos de ressonâncias isoladas*. ITN/RPI-R-02/63.
- [MAR05a] Marques, J.G., et al., 2005. *Test facility at the Portuguese Research Reactor for irradiations with fast neutrons in: Proceedings of the Workshop Radiation Effects on Components and Systems*, RADECS2004, p. 335–338.
- [MAR05b] Marques, J.G., et al., 2005. *Core Conversion of the Portuguese Research Reactor: First Results*, Proc. 2005 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Boston, Massachusetts, November 6-10.
- [MAR07] Marques, J.G., 2007. *Core Conversion of the Portuguese Research Reactor*, Proc. 48th Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management, Tucson (AZ), (Curran Associates, Inc., Red Hook, NY, 2008, ISBN: 9781605601021).
- [MAR08] Marques, J.G., et al., 2008. *Commissioning of the new LEU core of the Portuguese Research Reactor*, Proc. 2008 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Hamburg Germany, March 2-5.

- [MAR11] Marques, J.G., et al., 2011. *Characterization of the fast neutron irradiation facility of the Portuguese Research Reactor after core conversion*, Applied Radiation and Isotopes 69, 1128–1130.
- [MAT06] Matos, J.E., et al., 2006. *Core Conversion Analyses for the Portuguese Research Reactor*, Proc. 2006 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Cape Town, South Africa, October 29-November 2.
- [MEN97] Menezes, J.B., 1997. *Estudo do Reactor Português de Investigação*, ITN/RPI-R-97/48.
- [MOL82] Molina, J., et al., 1982. *BETA – Programa de cálculo de parâmetros característicos de espectros de neutrões rápidos*. DEEN NT-12, Departamento de Energia e Engenharia Nucleares, Sacavém.
- [MUE73] Mueck, K., et al., 1973. *Cadmium correction factors of several thermal neutron foil detectors*. Journal of Nuclear Energy, Vol. 27, pp. 677-688.
- [NIST4] NIST: *X-Ray Mass Attenuation Coefficients*. Table 4.
<http://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/tab4.html>
- [OLI75] Oliveira, J.C., 1975. *Radiometria num reactor nuclear de investigação*. LFEN-NI. 85 α , Sacavém.
- [OLI05] Oliveira, J.C., 2005. *O Reactor Nuclear Português - Fonte de conhecimento*. O Mirante.
- [OMEGA] *User's Guide, iServer MicroServer, EIS-2B and EIS-W, Serial to Ethernet and Internet*, OMEGA, USA.
- [OSV89] Osvay, M., et al., 1989. *Procedure for Preparation of Aluminium Oxide Radiation Detectors*. Hungarian Patent 201, 611.
- [OSV90] Osvay, M., et al., 1990. *Comparative PITL and PTTL investigations on TL detectors*. Radiat. Prot. Dosim. 33, 135-138.
- [OSV93] Osvay, M., et al., 1993. *Aluminium oxide in thermoluminescent materials*. Prentice Hall Inc., 243-263.
- [OSV96] Osvay, M., 1996. *Measurements on shielding experiments using $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:Mg,Y}$ TL detectors*. Radiat. Protec. Dosim. 66, no. 1-4, 217-219.

- [PUL06] *User's Guide for Installation and Operation, DIN-Rail Power Supplies*, Silver Line, PULS, 2006.
- [RAM02] Ramos, A.R., et al., 2002. *Calibração do Canal Térmico do RPI e Avaliação dos Erros Associados*, ITN/RPI-R-02/66.
- [RAN83] Ranogajec-Komor, M., et al., 1983. *Fast neutron detection with Al_2O_3 thermoluminescence dosimeter*. Nucl. Instrum. Meth. 212, 383–386.
- [REI92] Reis, M. A., et al., 1992. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 68, 300-304.
- [SAN07] Santos, J.P, et al., 2007, *Photon and fast neutron dosimetry using aluminium oxide thermoluminescence dosimeters in a pool-type research reactor*, Nucl. Instrum. Methods A 580, 310-313.
- [SAN11] Santos, J.P., et al, *Instalação de um sistema de registo contínuo para controlo da potência do RPI usando actividade de N-16*, ITN/RPI-R (em preparação).
- [SCP99] SCPI, 1999. *Standard Commands for Programmable Instruments (SCPI)*. Version 1999.0. Vol. 1-4. USA.
- [SIL87] Silva, H., 1987. *Determinação de doses de radiação gama no reactor português de investigação utilizando uma câmara de ionização*. Nota técnica DEEN 41.
- [WHI70] Whittaker, B, et al., 1970. *Red Perspex dosimetry*, manual on radiation dosimetry, 363-369.
- [WHI85] Whittaker, B. et al., 1985. *Some parameters affecting the radiation response and post-irradiation stability of red 4034 Perspex dosimeters* in proceedings of the international symposium, high dose dosimetry, 293-305.
- [WHI01] Whittaker, B., et al., 2001. *The influence of dose rate, ambient temperature and time on the radiation response of Harwell PMMA dosimeters*. Radiat. Phys. Chem. 60, no. 1-2, 101-110.